修士論文

KamLAND-Zen 実験における ^{214}Bi バックグラウンド除去のための発光性バルーンフィルムの開発研究

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻

小原　脩平

平成 26 年

概要

近年のニュートリノ物理学の発展はめざましく、ニュートリノ振動観測は、標準理論では質量を持たないニュートリノに対して有限の質量があることを実験的に証明した。現在のニュートリノに関わる物理の主なテーマは、CP 対称性の破れ、質量階層構造、ステライルニュートリノの存在の有無、そして粒子・反粒子の同一性 (マヨラナ性) である。ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) 探索は、ニュートリノのマヨラナ性検証のための唯一現実的な方法であり、世界中で注目を集めている。

KamLAND-Zen 実験では、^{136}Xe を二重ベータ崩壊核として $0\nu\beta\beta$ 探索を遂行している。極低バックグラウンド環境を活かし、世界最高感度での実験が可能となっているが、$0\nu\beta\beta$ 事象発見にはさらなるバックグラウンド除去が不可欠である。これまでの観測により $0\nu\beta\beta$ スペクトルに重なる様々なバックグラウンドが議論されているが、本研究ではバックグラウンドの中でも $0\nu\beta\beta$ 領域において最も支配的である ^{214}Bi の除去方法についての考察および開発研究を行った。

Xe 保持容器であるミニバルーンの素材中には ^{238}U 系列の放射性不純物が含まれる。^{238}U 系列の娘核である ^{214}Bi の出す β 線が ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 信号領域に重なるため感度の低下をまねいている。^{214}Bi バックグラウンドの除去として一般的な方法が Bi-Po 遅延同時計測法であるが、KamLAND 検出器のミニバルーン膜で α 線がトラップされるためにその除去効率は高くない。そこでミニバルーン自体をシンチレータとすることで、α 線に対する発光を実現し、遅延同時計測による ^{214}Bi バックグラウンド除去効率を改善させる。本研究では、そのシンチレータ機能を持ったバルーン素材となるフィルムの選定・評価を行った。またそれに伴い、波長変換剤入りの液体シンチレータの研究も行った。

本研究の結果、**P**oly**E**thylene**N**aphthalate 製の発光性バルーンと bis-MSB 添加液体シンチレータを導入することで、^{214}Bi バックグラウンド除去を実現し、1.7 年間の継続運転で逆階層構造に切り込む事ができることが判明した。Xe 量を 700 kg にする次期フェーズに導入すれば、4 ヶ月で逆階層構造に切り込み、5 年間の継続運転でニュートリノ有効質量約 23 meV までの探索感度を持つことを明らかにした。

目次

概要 i

第 1 章 序論 1
1.1 はじめに . . . 1
1.2 ニュートリノとは . . . 2
1.3 ニュートリノ振動 . . . 4
1.4 マヨラナ質量とシーソー機構 . . . 8
1.5 二重ベータ崩壊 . . . 11
1.6 二重ベータ崩壊探索実験 . . . 13

第 2 章 KamLAND と KamLAND-Zen 実験 16
2.1 **KamLAND** . . . 16
2.1.1 外部検出器 (Outer Detector : OD) . . . 17
2.1.2 内部検出器 (Inner Detector : ID) . . . 17
2.1.3 ニュートリノ事象の検出原理 . . . 19
2.2 **KamLAND-Zen** 実験 . . . 20
2.3 将来計画 . . . 22

第 3 章 KamLAND-Zen 実験のバックグラウンド 24
3.1 $0\nu\beta\beta$ 事象に対するバックグラウンド . . . 24
3.2 本研究の位置づけ . . . 26
3.2.1 ^{214}Bi バックグラウンド . . . 26
3.2.2 有効体積 (Fiducial Volume : FV) カット . . . 27
3.2.3 発光性バルーンフィルム . . . 28

第 4 章 発光性バルーン 29
4.1 発光性バルーンフィルムへの要求項目 . . . 29
4.2 発光性バルーンフィルム素材選定候補 . . . 33
4.3 素材候補の評価 . . . 35
4.3.1 α 線発光の確認 . . . 35
4.3.2 液体シンチレータ比での発光量の測定 . . . 38
4.3.3 発光波長の確認 . . . 42
4.3.4 発光波形の確認 . . . 44

4.3.5 PC 耐性の評価 . . . 47
4.3.6 透過率の評価 . . . 49
4.3.7 溶着方法の検討 . . . 51
4.3.8 溶着部の引張破断強度の評価 . . . 52
4.3.9 溶着部のリークチェック . . . 54
4.3.10 含有放射性不純物の評価 . . . 55
4.3.11 ガスバリア性の評価 . . . 57
4.4 考察 . . . 58

第 5 章 液体シンチレータの開発 59
5.1 研究動機および要求値 . . . 59
5.2 研究方法 . . . 59
5.3 bis-MSB 添加デカン-LS の評価 . . . 59
5.3.1 発光波長特性の調査 . . . 59
5.3.2 発光量の評価 . . . 61
5.3.3 透過率の評価 . . . 64
5.4 考察 . . . 65

第 6 章 シミュレーション 66
6.1 シミュレーションによるバックグラウンド数予測 . . . 66
6.1.1 シミュレーション条件 . . . 66
6.1.2 $0\nu\beta\beta$ 信号エネルギー領域の決定 . . . 68
6.1.3 FV の最適化 . . . 68
6.1.4 シミュレーションで予測されたバックグラウンド数と ^{136}Xe 0ν 信号数 . . . 70
6.2 質量上限値の予測 . . . 70
6.2.1 90%C.L. 領域の決定 . . . 70
6.2.2 実験感度予測 . . . 71
6.3 考察とまとめ . . . 73

第 7 章 結論と今後の課題 74

付録 A シンチレータ 75

付録 B 透過率測定 77

付録 C 含有放射性不純物 79

付録 D ^{238}U、^{232}Th 崩壊系列 80

付録 E 引張破断強度測定 82

付録 F 後方散乱測定 85

付録 G ^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測による α 線発光量測定 89

付録 H　加速劣化試験 99

付録 I　超音波溶着法 105

付録 J　その他の発光性バルーンフィルム素材候補 109

参考文献 113

第 1 章

序論

1.1 はじめに

素粒子の一種であるニュートリノは、電荷 0、スピン 1/2 の弱い相互作用しかしないユニークなフェルミオンである。ニュートリノは標準理論の枠組みの中では質量を持たないと考えられてきたが、ニュートリノ振動の実験的検証により、極小ではあるが有限の質量を持っていることがわかっている。ニュートリノの質量二乗差に関する実験結果は得られているものの、質量階層構造や絶対質量は明らかになっていない (図 1.1)。またニュートリノは、電荷などの正負の区別のあるパラメータを持たないため、粒子・反粒子が等しいとされるマヨラナ粒子である可能性がある。

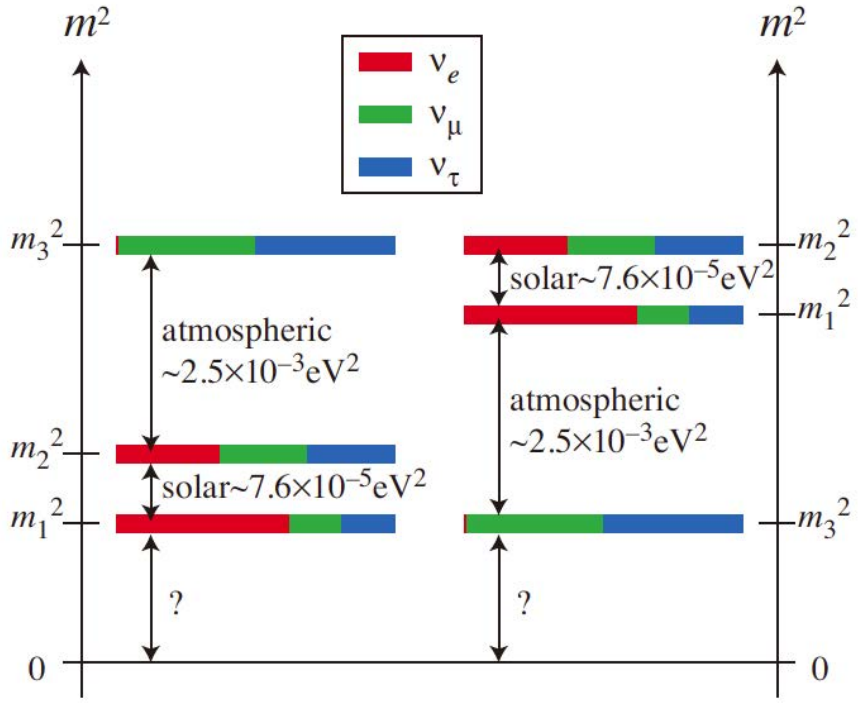

図 1.1　ニュートリノ質量階層構造 [1]。ニュートリノ振動観測実験 (後述) の結果から得られた質量二乗差と、質量階層構造。左図が $m_1 < m_2 < m_3$ となる通常階層 (Normal hierarhcy)、右図が $m_3 < m_1 < m_2$ となる逆階層構造 (Inverted Hierarchy)。また、m_1、m_2、m_3 が縮退する縮退構造 (Degenerated) もある。

ニュートリノがマヨラナ性を持つ場合、シーソー機構によってニュートリノが他レプトンよりも極端に質量が軽いことへの理論的説明がつくと期待される [2]。またレプトン数保存則を破る事象であるため、現在のような物質優勢な宇宙を構築したレプトジェネシスへの大きな手がかりとなりうる [3]。観測されない場合も、その崩壊率からニュートリノ有効質量および質量機構への制限をかけることが可能である。ニュートリノのマヨラナ性検証は素粒子物理学のみならず、宇宙の謎を解き明かすと期待されている実験として注目されている。

本研究は、^{136}Xe を用いたニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊探索実験「KamLAND-Zen」における ^{214}Bi バックグラウンド除去のための発光性バルーンの開発研究である。Xe 保持容器であるミニバルーンの素材中には ^{238}U 系列の放射性不純物が含まれ、^{238}U 系列の娘核である ^{214}Bi の出す β 線が ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 信号領域に重なるため感度の低下をまねいている。^{214}Bi バックグラウンドの除去として一般的な方法が ^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測法であるが、KamLAND のミニバルーン膜で ^{214}Po の α 線がトラップされるためにその除去効率は高くない。そこでミニバルーン自体をシンチレータとすることで、遅延同時計測による ^{214}Bi バックグラウンド除去効率を改善させる。本研究では、そのシンチレータ機能を持ったバルーン素材となるフィルムの選定・評価を行った。またそれに伴い、波長変換剤入りの液体シンチレータの研究も行った。

本論文は、次節でニュートリノ物理学および二重ベータ崩壊に関して簡単にまとめた後、第 2 章で KamLAND および KamLAND-Zen 実験の現状を述べ、第 3 章で KamLAND-Zen 実験におけるバックグラウンドについて議論する。第 4 章では本題である発光性バルーンについて、第 5 章では波長変換剤入りの液体シンチレータについて記述した。第 6 章では導入時の感度予測を行い、第 7 章で本研究をまとめる。

本研究では評価項目が多岐に渡るため、本文の記述量が非常に多くなってしまった。そのため本文中では「マヨラナニュートリノ探索のための、発光性能を持つバルーンフィルムおよび液体シンチレータの R&D」に関してまとめ、実験装置の較正や予備実験に関しては付録に記載させていただいた。

1.2　ニュートリノとは

ニュートリノの予言

ニュートリノは、1930 年に β 崩壊のエネルギー非保存を解決するために W.Pauli によって提唱された粒子である[*1][4]。β 崩壊が式 1.1 のように 2 体崩壊であるとすれば、飛び出す電子のエネルギーはモノクロ (単一) になる。

$$n \rightarrow p + e \tag{1.1}$$

しかし、実験によればそのエネルギースペクトルは連続的となった (参考図 1.2)。β 線のエネルギースペクトルが連続的である理由は、エネルギー角運動量保存則が成り立つとすれば[*2]、質量が無視できるほど

[*1] 当初は中性の粒子の意味として、「ニュートロン」と呼ばれていた。しかし 1932 年に J.Chadwik が重い中性の核粒子を発見し、「ニュートロン」と名づけてしまった。β 崩壊の理論を発展させた E.Fermi は、1934 年に「ニュートリノ」として命名しなおした。

[*2] N.Bohr はエネルギー・運動量・角運動量は保存する必要がないと主張していた。

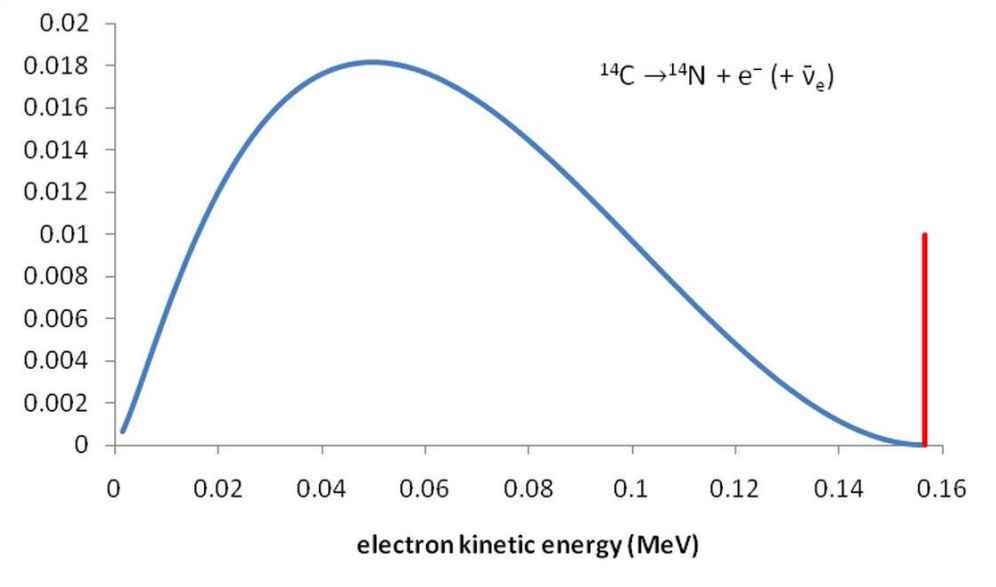

図 1.2　^{14}C の β 崩壊で放出される電子のエネルギースペクトル [5]。赤線は電子だけが放出された場合に期待される電子のエネルギー。青線は実際に観測された電子のエネルギー。

小さく、スピン半整数、荷電 0 のフェルミオンがエネルギーを持ち去ったことによるものであると考えたのである。その後、E.Fermi によって β 崩壊の理論的発展が成され [6][7]、崩壊反応は以下の様に記述される。

$$n \rightarrow p + e + \overline{\nu} \tag{1.2}$$

この時、ニュートリノに質量を要求する必要性はなく、E.Fermi も質量を 0 として仮定していた。仮に質量があったとしても、β 線エネルギースペクトルのエンドポイントでの振る舞いから、非常に小さくなければならない。いわゆる素粒子の標準理論では、ニュートリノ質量は 0 として扱われているが、現在ではニュートリノ振動観測によって質量が 0 ではないことが確かめられている (次節)。

ニュートリノの発見

ニュートリノは弱い相互作用でのみ検出可能なため発見は困難であったが、1956 年に F. Reines と C.L.Cowan Jr の実験によってニュートリノの存在が証明された [8][9]。$CdCl_2$ を溶かした水と液体シンチレータを用いて、逆 β 崩壊反応を利用した遅延同時計測法 (2 章参照) で原子炉反電子ニュートリノを捉えた。

さらに 1962 年 Schwarz らの実験では、陽子加速器からの 15 GeV の陽子を Be 原子核標的に衝突させて生成された荷電 π 中間子の崩壊において、μ 粒子とともに生成されるニュートリノがどのような反応を起こすかを調べた。

$$\nu + n \rightarrow e^- + p\ ,\quad \overline{\nu} + p \rightarrow e^+ + n \tag{1.3}$$
$$\nu + n \rightarrow \mu^- + p\ ,\quad \overline{\nu} + p \rightarrow \mu^+ + n \tag{1.4}$$

μ 粒子から生成されたニュートリノは、式 1.3~1.4 のうち、1.4 のみの反応を示した。ニュートリノは他レプトンと同様にフレーバーを持つことがわかり、ν_μ の発見となった。

2001 年には DONUT 実験によって ν_τ が発見された [10]。2002 年の LEP における Z ボゾンの崩壊分岐比の精密測定により、ニュートリノのフレーバーは 3 種類であることがわかり [11]、物質を構成する粒

子が全て実験によって発見された (表 1.1)。

表 1.1　物質を構成する粒子。

	電荷	第 1 世代	第 2 世代	第 3 世代
クォーク	$+\frac{2}{3}$	u	c	t
	$-\frac{1}{3}$	d	s	b
レプトン	-1	e	μ	τ
	0	ν_e	ν_μ	ν_τ

1.3　ニュートリノ振動

ニュートリノ振動とは、ニュートリノが飛行中に別のフレーバーへと確率的に変化する現象である。ニュートリノの質量が 0 である場合ニュートリノ振動は起こり得ないため、ニュートリノ振動の観測が、ニュートリノが質量を持つことの証明になった。

ここではまず、太陽ニュートリノ問題と大気ニュートリノ異常について簡単に触れた後、ニュートリノ振動公式の導出についてまとめる。

太陽ニュートリノ問題

太陽の内部活動を知るため、水素核融合反応 (式 1.5) で放出される太陽ニュートリノを観測する実験が進められた。

$$4p \rightarrow {}^4\mathrm{He} + 2e^+ + 2\nu_e + 26.73\ [\mathrm{MeV}] \tag{1.5}$$

太陽内部では pp-chein と呼ばれる陽子の連続核融合反応 (図 1.3) と炭素-窒素-酸素のサイクルである CNO サイクルが起こっている。Homestake 実験では、^{37}Cl の逆ベータ崩壊によって生成される ^{37}Ar(式 1.6) のレートを測定することによって太陽ニュートリノを観測していたが [12]、標準太陽模型から予測される電子ニュートリノ数は理論値の 1/3 程度と有意な差があった (太陽ニュートリノ問題)。

$$\nu_e + {}^{37}\mathrm{Cl} \rightarrow e^- + {}^{37}\mathrm{Ar} \tag{1.6}$$

大気ニュートリノ異常

太陽ニュートリノ同様、地球上大気で生成されるニュートリノ数に関しても、その観測数と理論値に食い違いが生じた。

地球に降り注ぐ第一次宇宙線は、大気中の原子核と式 1.7 のように反応しニュートリノを生成する。

$$\pi^\pm \rightarrow \mu^\pm + {}^{(}\overline{\nu}_\mu^{)}\ ,\quad \mu^\pm \rightarrow e^\pm + {}^{(}\overline{\nu}_e^{)} + {}^{(}\overline{\nu}_\mu^{)} \tag{1.7}$$

したがって、観測される大気ニュートリノ数は $\nu_e : \nu_\mu = 1 : 2$ となるはずだが、実際に Kamiokande 実

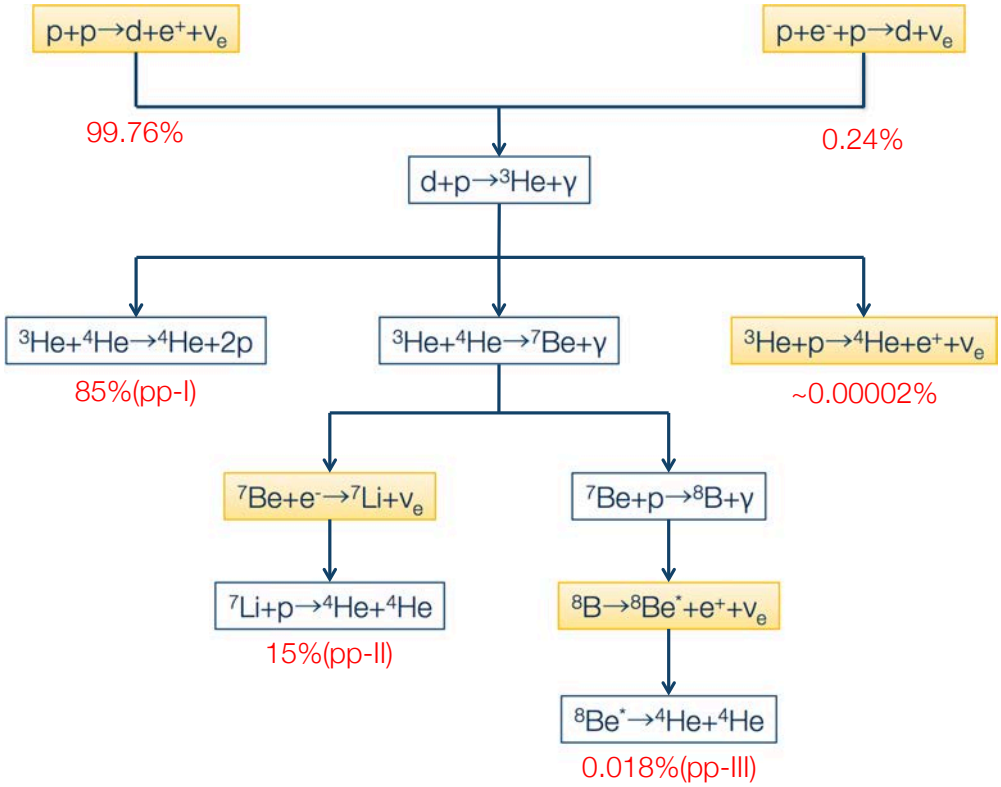

図 1.3　pp-chein

験などによって観測された値は期待値とは異なっていた (大気ニュートリノ異常[*3])。

$$\frac{(\nu_\mu/\nu_e)_{\text{measured}}}{(\nu_\mu/\nu_e)_{\text{observed}}} < 1 \tag{1.8}$$

2 フレーバーのニュートリノ振動

上述したようなニュートリノの理論値と観測値が異なる問題は、現在はニュートリノのフレーバーが振動変化することが原因であると理解されている。フレーバー振動するためには有限の 0 でない質量を持つことが要求されており、標準理論の枠内で質量を持たないニュートリノはフレーバー振動し得ない。この節では、まず質量を持つ 2 フレーバー間でのニュートリノ振動公式を導出する。ニュートリノが質量をもつ、すなわちニュートリノ振動が起きていることを発見した話については節を改めて後述する。

質量を持つニュートリノに対して、あるフレーバー固有状態 $|\nu_\alpha\rangle$ は、混合行列 U を用いて質量固有状態 $|\nu_i\rangle$ の重ね合わせとして表現され、

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}|\nu_i\rangle \ , \quad |\nu_i\rangle = \sum_\alpha \left(U^\dagger\right)_{i\alpha}|\nu_\alpha\rangle = \sum_\alpha U^*_{\alpha i}|\nu_\alpha\rangle \tag{1.9}$$

また質量固有状態 $|\nu_i\rangle$ の時間発展は

$$|\nu_i(x,t)\rangle = e^{-iE_i t}|\nu_i(x,0)\rangle \tag{1.10}$$

[*3] 太陽ニュートリノ観測では、太陽内部のニュートリノ生成理論と精密実験の結果の食い違いから「problem」であったが、大気ニュートリノに関してはその実験誤差から「anomaly」であった。

と表される。ニュートリノ質量は十分小さく、ほぼ光速で運動することからエネルギー E_i は相対論的に

$$E_i = \sqrt{m_i^2 + p_i^2} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2p_i} \simeq E + \frac{m_i^2}{2E} \tag{1.11}$$

となる (ただし、運動量 $p \gg m_i$、$E \approx p$)。

さて、フレーバー α のニュートリノの時間発展を考えると

$$|\nu_\alpha(x,t)\rangle = \sum_i U_{\alpha i} e^{-iE_i t} |\nu_i(x,0)\rangle = \sum_{i,\beta} U_{\alpha i} U^*_{\beta i} e^{ipx} e^{-iE_i t} |\nu_\beta\rangle \tag{1.12}$$

であるから、フレーバー α から β へ変化する確率は

$$P(\nu_\alpha \to \nu_\beta)(t) = |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(x,t)\rangle|^2 \tag{1.13}$$

$$\simeq \sum_i \sum_j U_{\alpha i} U^*_{\alpha j} U^*_{\beta i} U_{\beta j} e^{-(E_i - E_j)t} \quad (\because \text{式 1.11}) \tag{1.14}$$

$$= \sum_i \left| U_{\alpha i} U^*_{\beta i} \right|^2 + 2Re \sum_{j>i} U_{\alpha i} U^*_{\alpha j} U^*_{\beta i} U_{\beta j} \exp\left(-i \frac{\Delta m_{ij}^2}{2} \right) \frac{L}{E} \tag{1.15}$$

となる (ここで $L = x = ct,\ \Delta m_{ij}^2 \equiv m_i^2 - m_j^2$ とした)。

ここで電子型とミュー型の 2 フレーバーのニュートリノ振動を考える。混合角 θ 用いると式 1.9 は

$$|\nu_e\rangle = \quad \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta |\nu_2\rangle \tag{1.16}$$

$$|\nu_\mu\rangle = -\cos\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle \tag{1.17}$$

であるから式 1.13 より、2 フレーバーでのニュートリノ振動公式が導ける。

$$P(\nu_e \to \nu_\mu)(L) = |\langle \nu_e(0) | \nu_\mu(t)\rangle|^2 \tag{1.18}$$

$$= \left| \sin\theta\cos\theta \left(1 - e^{-i(E_1 - E_2)t} \right) \right|^2 \tag{1.19}$$

$$\simeq \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{\Delta m_{12}^2}{4E} L \right) \tag{1.20}$$

$$= \sin^2 2\theta \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m_{12}^2\ [\mathrm{eV}^2]}{E\ [\mathrm{GeV}]} L\ [\mathrm{km}] \right) \tag{1.21}$$

3 フレーバーのニュートリノ振動

さて、LEP の実験結果から弱い相互作用をするニュートリノは 3 種類であるので、3 フレーバーでのニュートリノ振動を考える。弱い相互作用に不活性なステライルニュートリノの探索実験も行われているが、ここでは割愛させていただく。

3 フレーバーにおける式 1.9 の混合行列 (Maki-Nakagawa-Sakata:MNS 行列) は

$$U_{MNS} = \begin{pmatrix} U_{e1} & U_{e2} & U_{e3} \\ U_{\mu 1} & U_{\mu 2} & U_{\mu 3} \\ U_{\tau 1} & U_{\tau 2} & U_{\tau 3} \end{pmatrix} \tag{1.22}$$

$$= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & c_{23} & s_{23} \\ 0 & -s_{23} & c_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{13} & 0 & s_{13} e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -s_{13} e^{i\delta} & 0 & c_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{12} & s_{12} & 0 \\ -s_{12} & c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \tag{1.23}$$

$$= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{-i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c23 - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \tag{1.24}$$

と書ける。(ただし、s_{ij} は質量固有値 m_i および m_j をもつ状態の混合角を θ_{ij} として、$\sin\theta_{ij}$ を表す。同様に $c_{ij} = \cos\theta_{ij}$。また δ は CP 対称性の破れの位相。)

ニュートリノ振動の観測実験

ニュートリノ振動観測を行った実験として、Super-Kamiokande 実験が挙げられる。Super-Kamiokande では大気ニュートリノの振動を観測し、

$$\sin 2\theta^2 > 0.82, \quad 5\times10^{-4} < \Delta m^2 < 6\times10^{-3}\ \mathrm{eV}^2\ (90\%\mathrm{C.L.}) \tag{1.25}$$

の結果を得た [13]。

また、原子炉ニュートリノの振動観測を行った実験として KamLAND 実験がある (KamLAND については次章)(図 1.4)。上述した太陽ニュートリノ問題には、太陽内強磁場とニュートリノ磁気モーメントの相互作用で他種ニュートリノに変化するというモデル (RSFP) などの別の可能性もあったが、KamLAND 実験によって LMA 解の検証が行われた [14]。

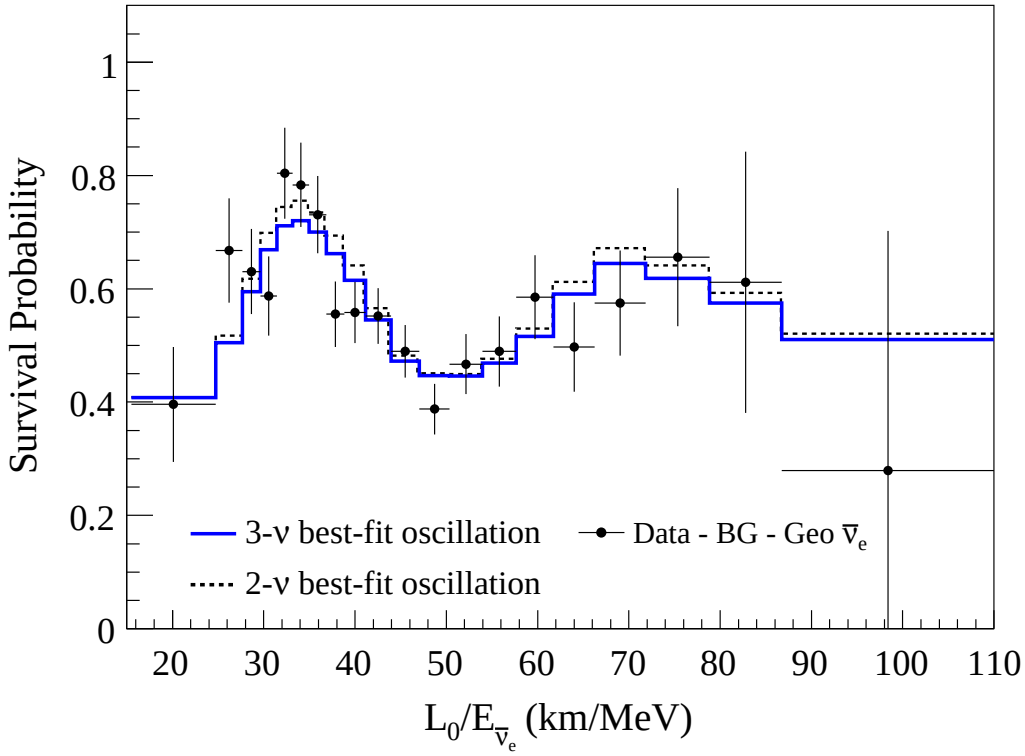

図 1.4　KamLAND における原子炉反電子ニュートリノの精密測定結果 [15]。

実験によってニュートリノ振動が観測されたことにより、ニュートリノの質量が 0 ではないことが確かめられた。しかしニュートリノ振動観測実験から得られる質量情報は、ニュートリノ質量の質量二乗差であり、その階層構造や絶対質量は分かっていない。これらの未だ明らかになっていない質量に関する制限をつける実験としてトリチウムのベータ崩壊実験 [16]、ニュートリノレス二重ベータ崩壊探索実験 (後述) などがある。次節ではニュートリノレス二重ベータ崩壊に重要な、ニュートリノのマヨラナ性について触れる。

1.4　マヨラナ質量とシーソー機構

ここで、粒子と反粒子が等しいとされるマヨラナフェルミオンについてまとめる。

通常のディラック粒子にマヨラナ質量項を考慮すると、マヨラナ質量項は位相変換に対して不変でないため、粒子数が等しくならない。すなわち、電荷保存則を前提としたディラック方程式に従うディラック粒子はマヨラナ質量項を持つことが許されない。しかしディラック方程式に従うスピン 1/2 のフェルミオンにおいて、電荷が 0 であればマヨラナ質量項を持ち得る（マヨラナ粒子)。ニュートリノはまさにスピン 1/2 で有限の質量を持つフェルミオンであり、電荷 0 であるため、このマヨラナ性を持つ可能性がある。また、ニュートリノの質量が極小である理由も、ニュートリノがマヨラナ粒子であればシーソー機構によって説明される。

ディラック質量

ディラック質量を m_D とすると、ディラック方程式は

$$(i\gamma_\mu \partial^\mu - m_D)\,\psi = 0 \tag{1.26}$$

対応するラグランジアン密度は

$$\mathcal{L} = \overline{\psi}\,(i\gamma_\mu \partial^\mu - m_D)\,\psi \tag{1.27}$$

と書ける。式 (1.27) の第一項は運動エネルギーに、第二項はディラック質量に対応する。これ以降は質量項について扱うので、

$$\mathcal{L}_D = m_D \overline{\psi}\psi \tag{1.28}$$

と書いておく。さて、$\overline{\psi}\psi$ はローレンツ不変でスカラーであり、$\mathcal{L}_D$ はハミルトニアンであることを要求すれば必然的に m_D は実数である。ここで任意のスピノール ψ, ϕ に対して

$$\overline{\psi}_L \phi_L = \overline{\psi} P_R P_L \phi = 0 \qquad\qquad \overline{\psi}_R \phi_R = 0 \tag{1.29}$$

であるから、(ただし、$P_{L,R} = \frac{1}{2}(1 \mp \gamma_5)$)

$$\overline{\psi}\phi = \left(\overline{\psi}_L + \overline{\psi}_R\right)\left(\phi_L + \phi_R\right) = \overline{\psi}_L \phi_R + \overline{\psi}_R \phi_L \tag{1.30}$$

すなわち、

$$\mathcal{L}_D = m_D \left(\overline{\psi}_L \phi_R + \overline{\psi}_R \phi_L\right) \tag{1.31}$$

を得る。ただし $\overline{\psi}_R \phi_L = \left(\overline{\psi}_L \phi_R\right)^\dagger$。

マヨラナ質量

質量項を考える際は上述のとおりラグランジアン密度がエルミートであることを要求して考える。ここでは、ψ の荷電共役である ψ^c を用いてスカラーをつくる。荷電共役演算子 C を用いて

$$\psi^c = C\overline{\psi}^T \tag{1.32}$$

$$C^{-1} = C^\dagger = -C,\ \gamma_\mu = -C\gamma_\mu^T C^{-1},\ \gamma_5 = C\gamma_5^T C^{-1} \tag{1.33}$$

スカラーになる組み合わせは $\overline{\psi}^c\psi^c, \overline{\psi}^c\psi, \overline{\psi}\psi^c$ であり、

$$\left(\overline{\psi}\psi^c\right)^\dagger = \left(\psi^\dagger\gamma_0 C\overline{\psi}^T\right)^\dagger = \left(C\overline{\psi}^T\right)^\dagger \gamma_0\psi = \psi^{c\dagger}\gamma_0\psi = \overline{\psi}^c\psi \tag{1.34}$$

したがってラグランジアンは

$$\mathcal{L}_M = \frac{1}{2}\left(m_M\overline{\psi}^c\psi^c + m_M\overline{\psi}^c\psi + m_M\overline{\psi}\psi^c\right) \tag{1.35}$$

m_M はマヨラナ質量。
ラグランジアンを右手系・左手系のスピノール ψ_R, ψ_L を使って書くと

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}m_M\left(\overline{\psi}^c_L\psi^c_R + \overline{\psi}^c_R\psi^c_L\right) + \frac{1}{2}m_M\left(\overline{\psi}_L\psi^c_R + \overline{\psi}_R\psi^c_L\right) + \frac{1}{2}m_M\left(\overline{\psi}^c_L\psi_R + \overline{\psi}^c_R\psi_L\right) \tag{1.36}$$

エルミート共役であるもの同士でまとめれば以下のように分離できる。

$$\mathcal{L}_D = \frac{1}{2}m_D\left(\overline{\psi}^c_L\psi^c_R + \overline{\psi}^c_R\psi^c_L\right) \tag{1.37}$$

$$\mathcal{L}_L = \frac{1}{2}m_L\left(\overline{\psi}_L\psi_R + \overline{\psi}^c_R\psi_L\right) \tag{1.38}$$

$$\mathcal{L}_R = \frac{1}{2}m_R\left(\overline{\psi}^c_L\psi_R + \overline{\psi}_R\psi^c_L\right) \tag{1.39}$$

通常のディラック方程式のラグランジアンの質量項と合わせれば

$$\mathcal{L}_{D+M} = m_D\left(\overline{\psi}_L\psi_R + \overline{\psi}^c_L\psi^c_R\right) + m_L\overline{\psi}_L\psi^c_R + m_R\overline{\psi}^c_L\psi_R + h.c \tag{1.40}$$

$$= m_D\left(\overline{\psi}_L\psi_R + \overline{\psi}^c_L\psi^c_R\right) + m_L\overline{\psi}^c_L\psi_L + m_R\overline{\psi}^c_R\psi_R + h.c \tag{1.41}$$

ここで、位相変換 $e^{i\alpha}$ （α は任意）に対する質量項の振る舞いを見ると、マヨラナ質量項については

$$\overline{\psi}\psi^c = \psi^\dagger\gamma_0 C\overline{\psi}^T = \psi^\dagger\gamma_0 C\left(\psi^\dagger\gamma_0\right)^T \Rightarrow \psi^\dagger e^{-i\alpha}\gamma_0 C\left(\psi^\dagger e^{-i\alpha}\gamma_0\right)^T \tag{1.42}$$

となり、位相変換に対して不変でないことが明らかである。したがって粒子数が保存せず、電荷を持った粒子にマヨラナ質量項を加えるとディラック方程式では記述され得ない。ところがニュートリノに関しては、電荷が 0 であるためマヨラナ質量項を持つことが許される。

ニュートリノがマヨラナ粒子であれば式（1.41）がからわかるように、右巻き左巻きニュートリノに対してそれぞれ独立な質量項が出てくるため、異なる質量をもたせることができる。次節ではニュートリノのマヨラナ性を仮定した上で、ニュートリノの質量が極端に小さいことを説明をしうるシーソー機構についてまとめる。

シーソー機構

ニュートリノの質量が他の素粒子に比べて極端に小さいことがわかっているが（図 1.5)、この理由を説明する理論として柳田、Gell-mann などによって提案されたものがシーソー機構である [2]。

マヨラナフェルミオンのラグランジアン密度は、式（1.41）より

$$\mathcal{L}_{D+M} = \begin{pmatrix}\overline{\psi}_L & \overline{\psi}^c_L\end{pmatrix}\begin{pmatrix}m_L & m_D\\ m_D & m_R\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\psi^c_R\\ \psi_R\end{pmatrix} + \begin{pmatrix}\overline{\psi}^c_R & \overline{\psi}_R\end{pmatrix}\begin{pmatrix}m_L & m_D\\ m_D & m_R\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\psi_L\\ \psi^c_L\end{pmatrix} \tag{1.43}$$

なので、

$$M \equiv \begin{pmatrix}m_L & m_D\\ m_D & m_R\end{pmatrix} \tag{1.44}$$

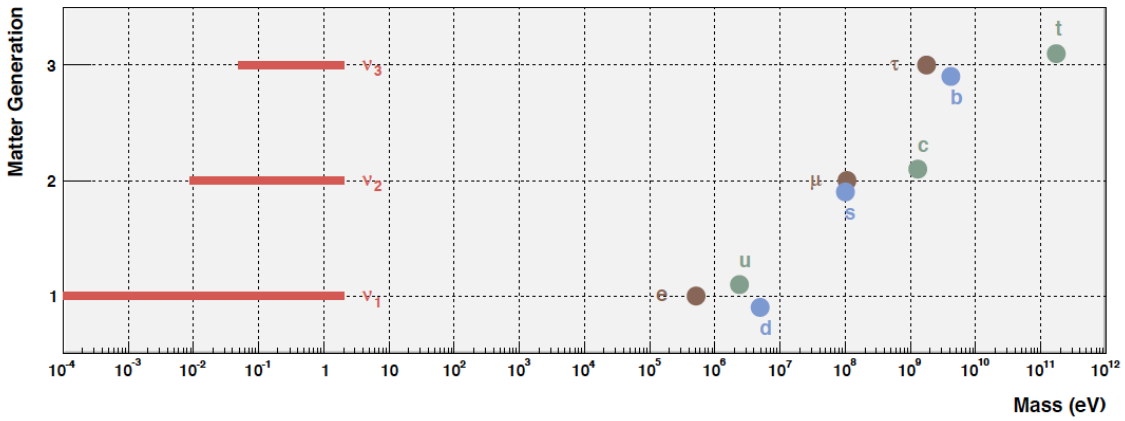

図 1.5　フェルミオンの質量 [17]

$$\Psi_L \equiv \begin{pmatrix} \psi_L \\ \psi_L^c \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \psi_L \\ (\psi_R)^c \end{pmatrix}, \ (\Psi_L)^c = \begin{pmatrix} \psi_R^c \\ \psi_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (\psi_L)^c \\ \psi_R \end{pmatrix} = \Psi_R^c \tag{1.45}$$

とすると、

$$\mathcal{L}_{D+M} = \overline{\Psi}_L M \Psi_R^c + \overline{\Psi}_R^c M \Psi_L \tag{1.46}$$

また、このマヨラナフェルミオンをニュートリノとして記述するならば

$$\mathcal{L}_{D+M} = m_D(\overline{\nu}_L N_R + \overline{N}_L^c \nu_R^c) + m_L \overline{\nu}_L \nu_R^c + m_R \overline{N}_L^c N_R + h.c. \tag{1.47}$$

$$= (\overline{\nu}_L \quad \overline{N}_L^c) \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_R^c \\ N_R \end{pmatrix} + h.c. \tag{1.48}$$

ここで $\psi_L = \nu_L, \psi_R^c = \nu_R^c, \psi_R = N_R, \psi_L^c = N_L^c$ とした。$\nu_{L,R}(= \psi_L, \psi_R^c)$ はいわゆるニュートリノであり、$N_{L,R}(= \psi_R, \psi_L^c)$ は弱い相互作用をしないステライルニュートリノである。

さて、一般にマヨラナフェルミオンの質量固有状態は M を対角化して以下のように表される。

$$\psi_{1L} = \cos\theta\psi_L - \sin\theta\psi_L^c \quad \psi_{1R}^c = \cos\theta\psi_R^c - \sin\theta\psi_R \tag{1.49}$$

$$\psi_{2L} = \sin\theta\psi_L + \cos\theta\psi_L^c \quad \psi_{2R}^c = \sin\theta\psi_R^c + \cos\theta\psi_R \tag{1.50}$$

ここで混合角 θ は

$$\tan 2\theta = \frac{2m_D}{m_R - m_L} \tag{1.51}$$

となり、質量固有値は

$$\tilde{m}_{1,2} = \frac{1}{2}\left[(m_L + m_R) \pm \sqrt{(m_L - m_R)^2 + 4m_D^2}\right] \tag{1.52}$$

質量 m に〜をつけたのは、正の質量について定義するためである。

$$\tilde{m_k} = \epsilon_k m_k, \quad m_k = |\tilde{m_k}|, \quad \epsilon_k = \pm 1 (k = 1, 2) \tag{1.53}$$

質量 m_1, m_2 を持つ独立なマヨラナ場 $\phi_k = \psi_{kL} + \epsilon_k \psi_{kR}^c$ が表現されて

$$\phi_1 = \psi_{1L} + \epsilon_1 \psi_{1R}^c = \cos\theta(\psi_L + \epsilon_1 \psi_R^c) - \sin\theta(\psi_L^c + \epsilon_1 \psi_R) \tag{1.54}$$

$$\phi_2 = \psi_{2L} + \epsilon_2 \psi_{2R}^c = \sin\theta(\psi_L + \epsilon_2 \psi_R^c) + \cos\theta(\psi_L^c + \epsilon_2 \psi_R) \tag{1.55}$$

また、マヨラナ場であることから

$$\phi_k^c = (\psi_{kL})^c + \epsilon_k \psi_{kL} = \epsilon_k(\epsilon_k \psi_{kR}^c + \psi_{kL}) = \epsilon_k \phi_k \tag{1.56}$$

が要求される。ϵ_k はマヨラナ場 ϕ_k に対する CP 固有値となっている。以上から

$$\mathcal{L}_{D+M} = m_1 \overline{\phi_1} \phi_1 + m_2 \overline{\phi_2} \phi_2 \tag{1.57}$$

さて、右巻きマヨラナ質量が左巻きマヨラナ質量やディラック質量に比べて極端に重い ($m_R \gg m_D, m_L \cong 0$) と仮定すると

$$m_1 = -\frac{1}{2} m_R + \frac{1}{2} m_R \sqrt{1 + 4m_D^2/m_R^2} \cong -\frac{1}{2} m_R + \frac{1}{2} m_R (1 + \frac{2m_D^2}{m_R^2}) = \frac{m_D^2}{m_R} \ll m_D \tag{1.58}$$

$$m_2 = \frac{1}{2} m_R + \frac{1}{2} m_R \sqrt{1 + 4m_D^2/m_R^2} \cong \frac{1}{2} m_R + \frac{1}{2} m_R (1 + \frac{2m_D^2}{m_R^2}) \cong m_R \gg m_D \tag{1.59}$$

$$(\epsilon_1 = -1, \epsilon_2 = +1) \tag{1.60}$$

したがってふたたびニュートリノに関する表現にすると（$1 \to \nu,\ 2 \to N$)、ν および N を式（1.54)、式 (1.55）から

$$\nu = \cos\theta(\nu_L - \nu_R^c) - \sin\theta(N_L^c - N_R) \tag{1.61}$$

$$N = \sin\theta(\nu_L + \nu_R^c) + \cos\theta(N_L^c + N_R) \tag{1.62}$$

として

$$\mathcal{L}_{D+M} = \begin{pmatrix} \overline{\nu} & \overline{N} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_\nu & 0 \\ 0 & m_N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu \\ N \end{pmatrix} \to \begin{pmatrix} \overline{\nu} & \overline{N} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{m_D^2}{m_R} & 0 \\ 0 & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu \\ N \end{pmatrix} \tag{1.63}$$

となり、ニュートリノ質量 m_ν が極端に軽くなることがわかる。

1.5　二重ベータ崩壊

ニュートリノのマヨラナ性を検証するにあたって、例えばニュートリノビーム同士を衝突させる実験などは反応断面積が極端に小さいため非常に難しい。しかし二重ベータ崩壊では小さな空間に 2 つのニュートリノを発生させることができ、この反応を用いたニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) の探索実験が唯一の現実的な方法である。ここでは、KamLAND-Zen 実験に関連して、ニュートリノを伴う二重ベータ崩壊モード ($2\nu\beta\beta$) とニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊モード ($0\nu\beta\beta$) について述べる。

原子核内において同時に 2 つのベータ崩壊がおこる二重ベータ崩壊は、通常のベータ崩壊がエネルギー的に禁止される場合や、スピン遷移則で強く抑制されている原子核において許容される（図 1.6)。しかし二重ベータ崩壊は弱い相互作用の二次の過程による崩壊のため、非常に稀有な現象である [18]。

$2\nu\beta\beta$ 崩壊モード

2 つの中性子が陽子に転換され、2 つの電子と 2 つの反電子ニュートリノを放出する崩壊である。(式 1.64）この崩壊モードは標準理論の枠内で起こる。ベータ崩壊ではニュートリノがエネルギーの一部を持ち出すため、電子のエネルギースペクトルは連続的になる。

$$2n \to 2p + 2e^- + 2\overline{\nu}_e \tag{1.64}$$

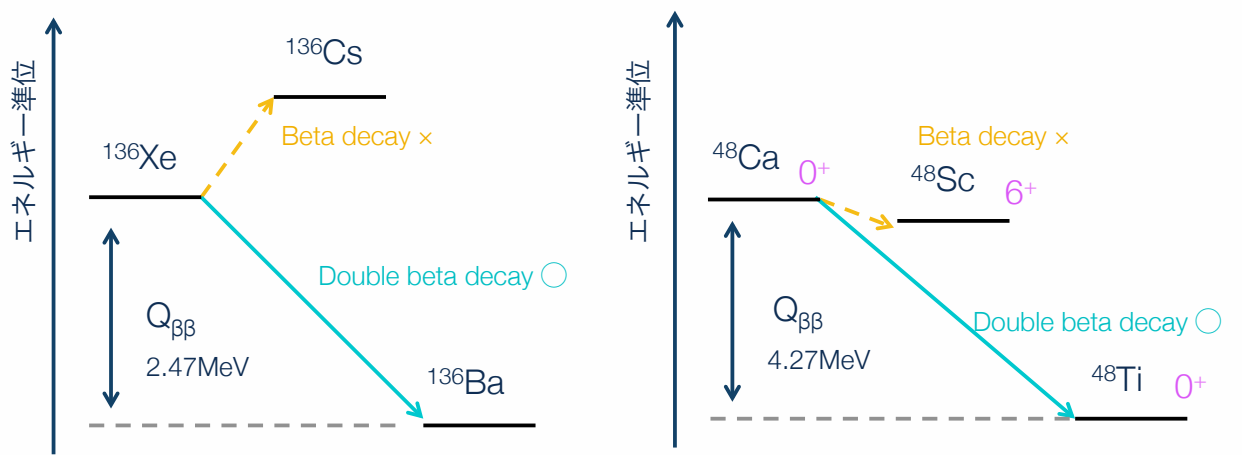

図 1.6　左図：^{136}Xe における二重ベータ崩壊。陽子・中性子数がともに偶数である偶ー偶核においては、ベータ崩壊後の原子核のエネルギーが崩壊前の原子核のエネルギーよりも高いために通常のベータ崩壊が禁止される。右図：^{48}Ca における二重ベータ崩壊。スピン遷移則で強く抑制される。

崩壊率は

$$\left(T_{1/2}^{2\nu}\right)^{-1} = G^{2\nu}\left|M^{2\nu}\right|^2 \tag{1.65}$$

で表される。ただし、$G^{2\nu}$ は位相空間因子、$M^{2\nu}$ は核行列要素である。

$0\nu\beta\beta$ 崩壊モード

ニュートリノがマヨラナ粒子であれば、ニュートリノが放出されない崩壊モードが許される（式 1.66）。

$$2n \rightarrow 2p + 2e^- \tag{1.66}$$

この崩壊における放出電子のエネルギースペクトルは、ニュートリノが放出されないため、連続スペクトルにはならずに Q 値におけるモノクロなピークとなる。ただし、検出器のエネルギー分解能の分だけ幅を持つ (図 1.7)。そのため $2\nu\beta\beta$ モードとの区別が容易となるが、前述のように $0\nu\beta\beta$ モードは稀有

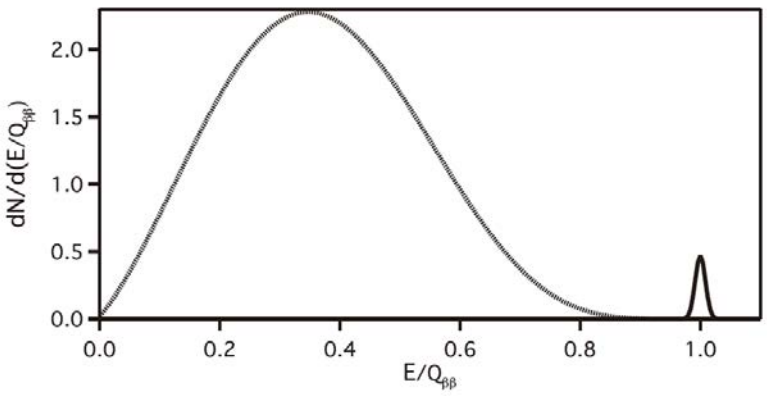

図 1.7　二重ベータ崩壊エネルギースペクトル [19]。

な現象であるため、$0\nu\beta\beta$ モードの二重ベータ崩壊は観測されていない [17]。崩壊率は以下のように表される。

$$\left(T_{1/2}^{0\nu}\right)^{-1} = G^{0\nu}\left|M^{0\nu}\right|^2 \langle m_{\beta\beta}\rangle^2 \tag{1.67}$$

$$|\langle m_{\beta\beta}\rangle| \equiv \left|\left|U_{e1}^{L}\right|^{2} m_1 + \left|U_{e2}^{L}\right|^{2} m_2 e^{i\phi_2} + \left|U_{e3}^{L}\right|^{2} m_3 e^{i\phi_3}\right| \tag{1.68}$$

ここで、$e^{i\phi_2}$ および $e^{i\phi_3}$ はマヨラナ CP 位相、$U_{ei}^{L}(i = 1 \sim 3)$ は混合行列要素である。$2\nu\beta\beta$ モードの場合と同様に、$G^{0\nu}$、$M^{0\nu}$ はそれぞれ位相空間因子、核行列要素であるが、ニュートリノ有効質量 ($\langle m_{\beta\beta}\rangle$) の 2 乗のファクターがかかっている (式 1.68)。核行列要素 $M^{0\nu}$ には様々な計算モデルが存在しており、また原子核によっては複雑な計算が必要となるため、その不定性は非常に大きい。0ν モードの二重ベータ崩壊の半減期を測定することにより、理論的な不定性を残してニュートリノの有効質量を直接測定することが可能になる。また図 1.8 のように、質量階層構造への制限がかかる [17]。

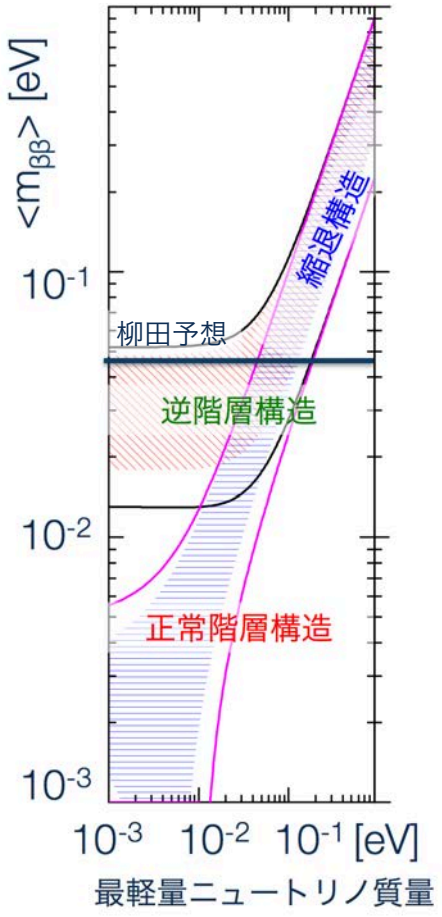

図 1.8　ニュートリノ有効質量と質量階層構造 [20] および柳田予想。

また、2 つの重い右巻きニュートリノモデルを仮定し、パラメータを最小限化して得られたニュートリノ有効質量の予測値は 47 ± 1 meV であり (柳田予想 [2])、質量階層構造は逆階層構造となっている。

1.6　二重ベータ崩壊探索実験

世界で行われている主な二重ベータ崩壊探索実験について紹介する。

Hidelberg-Moscow

Ge　11 kg、濃縮 ^{76}Ge を使用した半導体検出器。これまでに得られた $0\nu\beta\beta$ 半減期およびニュートリノ有効質量上限値を式 1.69 に示す [21]。

$$T^{0\nu}_{1/2} > 1.9 \times 10^{25}\ \text{yr}, \qquad \langle m_{\beta\beta}\rangle < 350\ \text{meV} \quad (90\%\ \text{C.L.}) \tag{1.69}$$

また一部の研究者は 6σ でニュートリノ有効質量 0.32 $\pm$ 0.03 eV にて $0\nu\beta\beta$ を発見したと主張しており (KK-Claim)、得られた半減期は

$$T^{0\nu}_{1/2} = 2.23^{+0.44}_{-0.31} \times 10^{25}\ \text{yr} \tag{1.70}$$

であった [22]。

しかし、KamLAND-Zen 実験および EXO 実験結果とは相容れない [31]。

GERDA (**GER**manium **D**etector **A**rray experiment)

Ge　14.66 kg、 86% 濃縮 ^{76}Ge を使用した半導体検出器。KK-Claim の検証実験として非常に重要であるが、Q 値付近にて有意なデータは得られておらず、得られた半減期は下記の通りである [23]。

$$T^{0\nu}_{1/2} > 2.1 \times 10^{25}\ \text{yr} \quad (90\%\ \text{C.L.}) \tag{1.71}$$

EXO-200 (**E**nriched **X**enon **O**bservatory)

^{136}Xe を崩壊核として 175 kg の液体キセノンを使用。TPC(**T**ime **P**rojection **C**hamber) および APD(**A**valanche **P**hoto**D**iodes) を検出器とし、荷電粒子とシンチレーション光を捉えることで 1.6%@2,615 keV のエネルギー分解能を実現している。2012 年 7 月における結果 [24] では

$$T^{0\nu}_{1/2} > 1.6 \times 10^{25}\ \text{yr}, \qquad \langle m_{\beta\beta}\rangle < 140 \sim 380\ \text{meV} \quad (90\%\ \text{C.L.}) \tag{1.72}$$

だったが、2014 年の最新結果 [25] では

$$T^{0\nu}_{1/2} > 1.2 \times 10^{24}\ \text{yr} \quad (90\%\ \text{C.L.}) \tag{1.73}$$

とやや後退している。

SNO+

^{130}Te(天然同位体存在比 30%) を 800 kg 使用したシンチレータ検出器 [26]。実験感度は 3〜5 年の運転で逆階層構造まで届くとされているが、2015 年現在は未だ液体シンチレータの入れ替え作業中である。液体シンチレータを利用した検出器という観点で KamLAND-Zen 実験との類似点があり、SNO+ で導入が予定されている LAB(Linear Alkyle Benzene) をベースとした液体シンチレータ [27] について、KamLAND グループでも研究開発が進んでいる [28]。

CUORE (The **C**ryogenic **U**nderground **O**bservatory for **R**are **E**vents)

TeO_2、^{130}Te 11 kg(同位体濃縮無し) を使用し、「CUORE0」として一部稼働中。ボロメータ利用したエネルギー分解能の良い検出器である。最終的には 206 kg の ^{130}Te を用いることで、5 年間の継続運転で

$$T^{0\nu}_{1/2} > 2.1 \times 10^{26}\ \text{yr}, \qquad \langle m_{\beta\beta}\rangle < 24 \sim 81\ \text{meV} \quad (68\%\ \text{C.L.}) \tag{1.74}$$

までの感度到達を目標としている [29]。

KamLAND-Zen

崩壊核は ^{136}Xe で、第 1 フェーズでは 320 kg、第 2 フェーズでは 383 kg を液体シンチレータに溶解させた極低バックグラウンド検出器。KamLAND および KamLAND-Zen 実験詳細については後述する。KamLAND-Zen 第 1 フェーズおよび EXO-200 の結果からニュートリノ有効質量 120∼250 meV の上限値が得られている (図 1.9)[31](核行列要素の理論的不定性を含む)。また 2014 年の最新結果では KamLAND-Zen 単独で KK-Claim を排除しており、

$$T^{0\nu}_{1/2} > 2.6 \times 10^{25}\ \text{yr}, \qquad \langle m_{\beta\beta} \rangle < 140 \sim 280\ \text{meV} \quad (90\%\ \text{C.L.}) \tag{1.75}$$

の半減期とニュートリノ有効質量の上限値を得ている [30]。

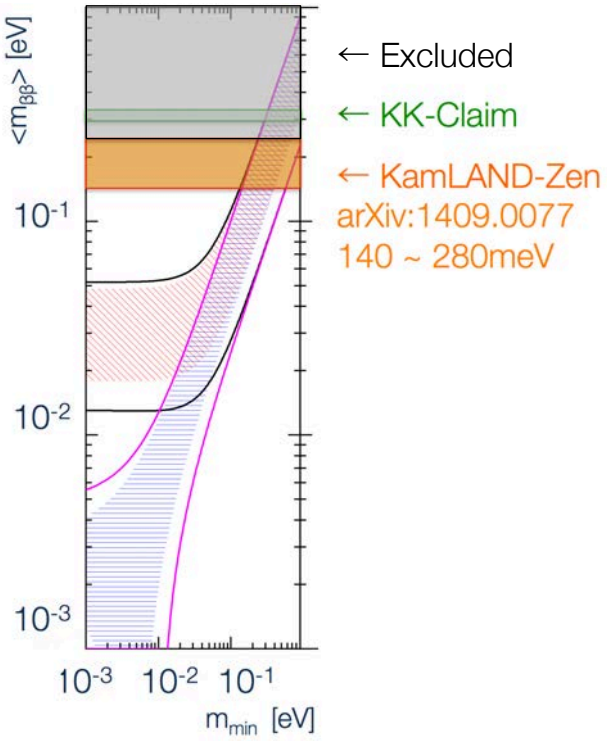

図 1.9　KamLAND-Zen 実験結果。上限値は 140∼280 meV(90%C.L.)[30]。

第 2 章

KamLAND と KamLAND-Zen 実験

この章では、KamLAND および $0\nu\beta\beta$ 探索実験である KamLAND-Zen 実験の現状とその将来計画についてまとめる。

2.1 KamLAND

KamLAND(**Kam**ioka **L**iquid scintillator **A**nti-**N**eutrino **D**etector) は岐阜県神岡鉱山内、旧 Kamiokande 跡地に建設された大型反電子ニュートリノ検出器である。池ノ山山頂より地下 1,000 m に位置し、その岩盤による遮蔽効果により宇宙線ミューオンフラックスを地上比 10^{-5} 以下まで低減している。Super-Kamiokande のような純水を用いてチェレンコフ光を見る検出器ではなく、液体シンチレータを使用しているため、α、β、γ 線を捉えることができる。

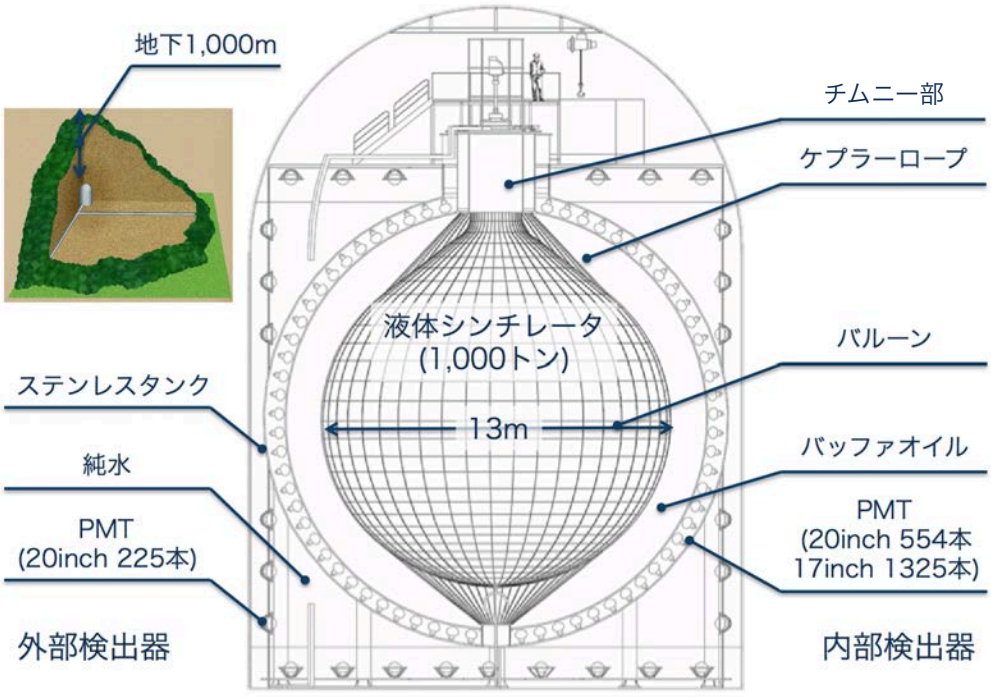

図 2.1　KamLAND

2.1.1　**外部検出器** (Outer Detector : OD)

外部からくる γ 線や周囲の岩盤からの中性子を吸収する他、宇宙線バックグラウンドをタギングするためのアクティブシールドである。直径 20 m、高さ 20 m の円柱形タンクと球形ステンレスタンクの間に 3,000 トンの純水が満たされ、荷電粒子によるチェレンコフ光を 225 本の 20inch 光電子増倍管 (PMT) で捉えており、宇宙線 veto に用いられる。

2.1.2　**内部検出器** (Inner Detector : ID)

ニュートリノ事象を捉える KamLAND の心臓部である。直径 13 m のバルーン内に満たされた 1,000 トンの液体シンチレータが、飛来したニュートリノと反応することによりシンチレーション光を発する。発光は 17inch および 20inch PMT によって検出される。

バッファオイル

バルーンの保持位置の安定化、および外部からの γ 線が液体シンチレータ内に入り込むのを抑える役割を持つ。また、放射性不純物を多く含むステンレスタンク壁と液体シンチレータとの間に距離をつくり、これらの放射線で発光しないことによりイベントレートを下げる役割も担う。バッファオイルの組成を表 2.1 に示す。

表 2.1　バッファオイル組成

物質名	組成式	密度	体積組成
N-12(ドデカン)	$C_{12}H_{26}$	0.749 g/cm^3	53%
イソパラフィン (パラオール 250)	C_nH_{2n+2}	0.795 g/cm^3	47%
バッファオイル	–	0.77690 g/cm^3	–

光電子増倍管 (PMT)

OD の円筒形ステンレス内壁に 225 本の 20inch PMT、ID の球形ステンレス内壁に 554 本の 20inch PMT および 1,325 本の 17inch PMT が取り付けられている。20inch PMT は KamLAND の前身である Kamiokande にて使用されていたものに耐油加工を施したもので、 17inch PMT は時間分解能向上を目的として KamLAND 実験用に開発したものである。主な改良点は、ダイノード部をベネチアン・ブラインド型からボックス型 1 段とラインフォーカス型 9 段の構成に変更した点である。また、光電面の端の部分では中央部に比べて分解能が悪化するため、口径が 17inch になるようにマスキングしている。PMT 自体の大きさは 20inch PMT と 17inch PMT に差はないが、光電面の大きさで呼称をこのように分けている。

バルーン

バルーンは舟形上ゴアを 44 枚溶着することで作成されている。強度、透過率などの観点から 3 層のナイロンを EVOH で挟み込んだ計 5 層、厚さ 135 μm のフィルムから成る。

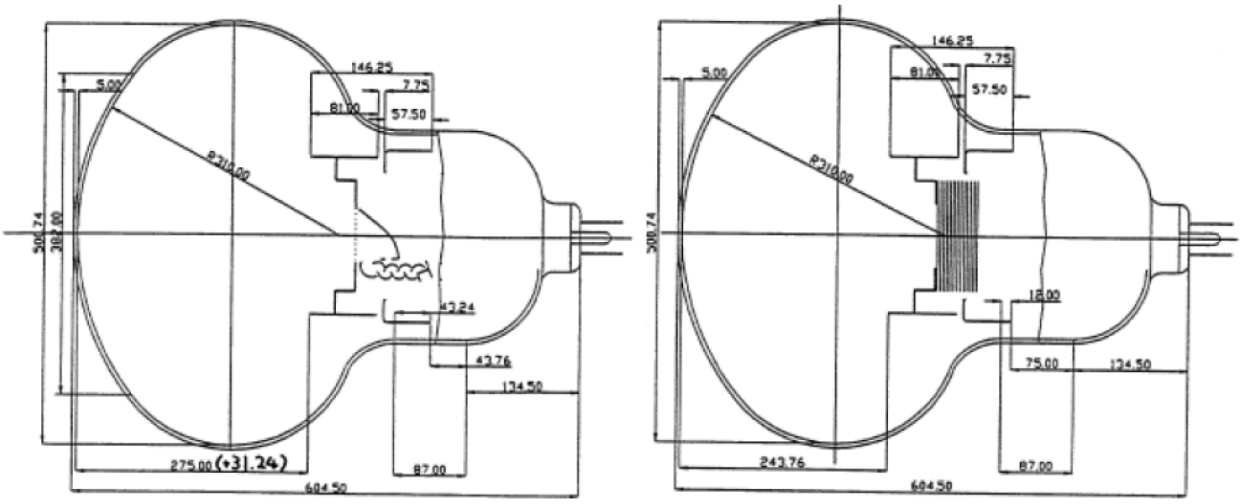

図 2.2　17inchPMT と 20inchPMT

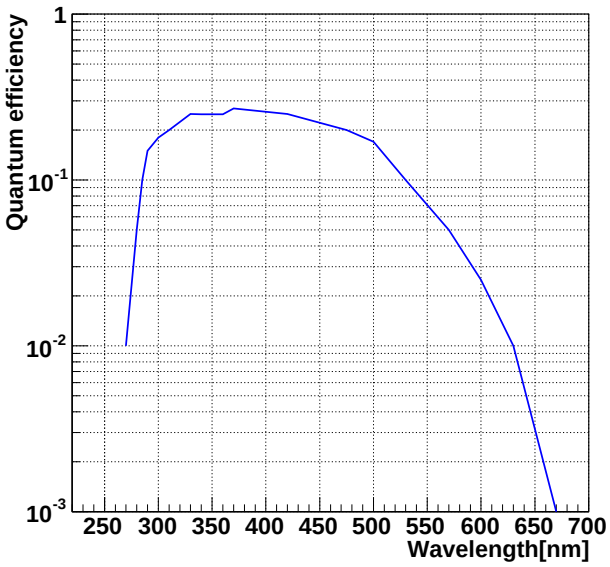

図 2.3　17inchPMT 量子効率

液体シンチレータ (Liquid Scintillator : LS)

シンチレータは一般に、有機固体シンチレータ、無機固体シンチレータ、液体シンチレータなどに分けられる (付録 A)。KamLAND では表 2.2 で構成される液体シンチレータ (KamLAND-LS) を用いている。この KamLAND-LS では PPO が発光剤として添加されており、PC が溶媒、N-12 はミネラルオイルとして液体シンチレータの透過率低下を防ぎ密度調整の役割を担っている[*1]。

[*1] PC を 100% とした液体シンチレータの場合、透過率が悪くなったため、ミネラルオイルを用いて高透過率を維持した。

表 2.2　KamLAND-LS 組成

物質名	組成式	密度	体積組成
N-12(ドデカン)	$C_{12}H_{26}$	0.749 g/cm^3	80%
PC(1, 2, 4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	0.875 g/cm^3	20%
PPO(2, 5 ジフェニルオキサゾール)	$C_{15}H_{11}NO$	–	1.36 g/l
KamLAND-LS	–	0.77721 g/cm^3	–

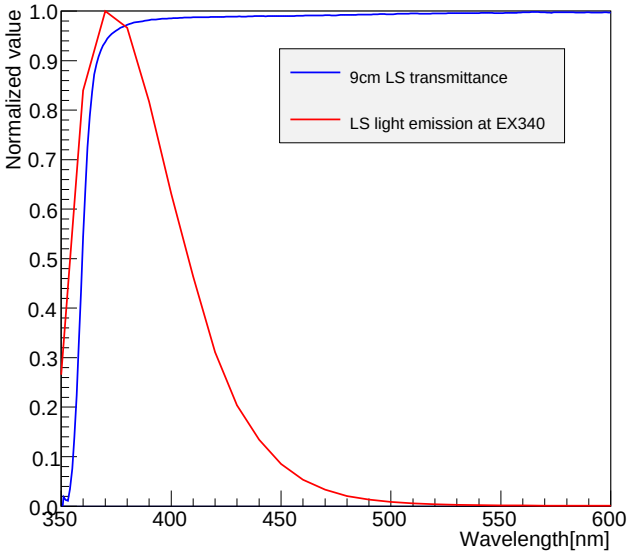

図 2.4　KamLAND-LS の透過率 (青色) と発光スペクトル (赤色)。透過率はダブルビーム型分光光度計 U-3900(付録 B) を用いて測定した 9 cm 長での透過率。発光スペクトルは F-2000 分光光度計 (後述) にて励起光 340 nm を当てて測定したもの。

2.1.3　ニュートリノ事象の検出原理

KamLAND に飛来した反電子ニュートリノは、液体シンチレータ中の陽子と逆ベータ崩壊反応を起こす (式 2.1、図 2.5)。この反応で生ずる陽電子で液体シンチレータが発光し、また電子と対消滅することで 511 keV の γ 線を 2 本出す。また中性子は周囲の原子核と弾性散乱を起こし熱中性子となり、その後寿命 $\tau \sim 210$ μsec で陽子に中性子捕獲され、2.22 MeV の γ 線を出す。陽電子によるものを先発信号、熱中性子捕獲によるものを後発信号として遅延同時計測を行うことにより、反電子ニュートリノイベントを選別している。

$$\overline{\nu}_e + p \rightarrow n + e^+ \tag{2.1}$$

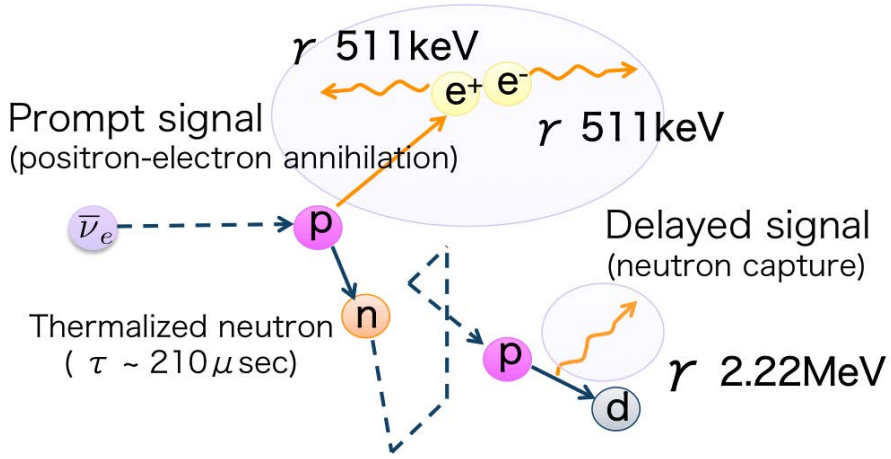

図 2.5　KamLAND における反電子ニュートリノ検出原理。

2.2　KamLAND-Zen 実験

KamLAND-Zen(**Ze**ro-**n**eutrino double beta decay search) 実験は、極低バックグラウンド環境である KamLAND を用いて $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索を行う実験である。液体シンチレータに二重ベータ崩壊核として ^{136}Xe を溶解させ、ナイロン製ミニバルーン内に満たすことで実験を遂行している (図 2.6)。ミニバルーンはロープにて KamLAND 中心に保持されている。

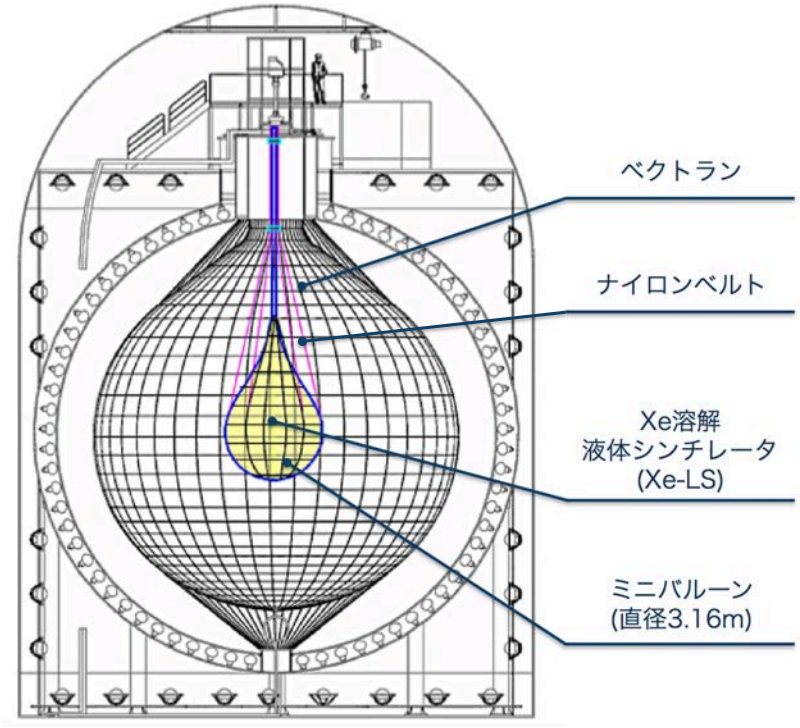

図 2.6　KamLAND-Zen 実験

二重ベータ崩壊核 (Xe)

KamLAND-Zen 実験では、二重ベータ崩壊核として ^{136}Xe を用いている。Xe を選択した理由として、液体シンチレータに溶けて色がつかないことや、液体シンチレータに対し体積比約 4.1 倍 (最大約 3.2 wt%) 溶けること、^{136}Xe の濃縮が比較的容易なこと、液体シンチレータから取り出して再利用・純化が可能であることが挙げられる。実際に、2013 年に行われた作業により、Xe を溶かしこんだ液体シンチレータ (Xe-LS) から Xe を回収、再純化できることが確かめられている。これにより、将来的に $0\nu\beta\beta$ 事象を観測できた際に Xe を抜いた状態で再度測定を行うことで、二重ベータ崩壊核の有無で実験データの比較が可能となる。

^{136}Xe は図 1.6 のように $Q_{\beta\beta}$ 値を持ち、安定な ^{136}Ba へ二重ベータ崩壊をする。

Xe 含有液体シンチレータ (Xe-LS)

Xe を溶解させた際に、Xe での密度増加の影響によってミニバルーン内外での密度差が大きくならないようにするため、KamLAND-LS とは異なる組成になっている (表 2.3)。

表 2.3　Xe-LS 組成。ただし Xe-LS の密度は Xe 溶解前の密度。

物質名	組成式	密度	体積組成
N-10(デカン)	$C_{10}H_{22}$	0.735 g/cm^3	82.3%
PC(1, 2, 4 トリメチルベンゼン)	C_9H_{12}	0.875 g/cm^3	17.7%
PPO(2, 5 ジフェニルオキサゾール)	$C_{15}H_{11}NO$	–	2.7 g/l
Xe	–	–	3.0 wt%
Xe-LS	–	0.76068 g/cm^3	–

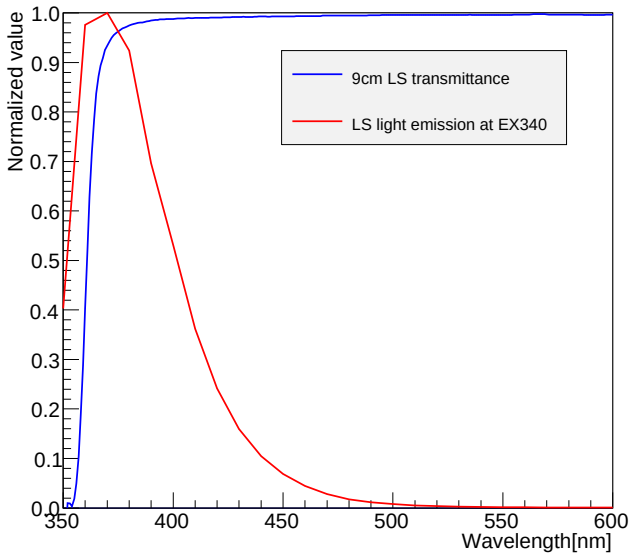

図 2.7　Xe-LS の透過率 (青色) と発光スペクトル (赤色)。透過率はダブルビーム型分光光度計 U-3900(付録 B) を用いて測定した 9 cm 長での透過率。発光スペクトルは F-2000 分光光度計にて励起光 340 nm を当てて測定したもの。

ミニバルーン

Xe-LS の保持容器であり、KamLAND 中心部に設置されている。$0\nu\beta\beta$ 探索の実験領域を制限することにより、液体シンチレータの宇宙線破砕事象や太陽ニュートリノなどの体積に比例するバックグラウンドを抑えることができる。

ミニバルーンのフィルム素材の候補としてガスバリア性の高い EVOH が当初挙げられたものの、強度の面から断念せざるをえず、ナイロンが用いられている。溶着に関しては、通常よりも融点を高く設定できる熱溶着機を特注し、舟形上のゴア計 24 枚を溶着している (図 2.8)。ナイロンフィルム自体の破断強度は 4.9 kgf/cm である [32]。透過率は 370 ~ 450 nm の領域で 99% 以上という高透過率を実現している [33]。ナイロンフィルムに含まれる放射性不純物については付録 C にまとめた。

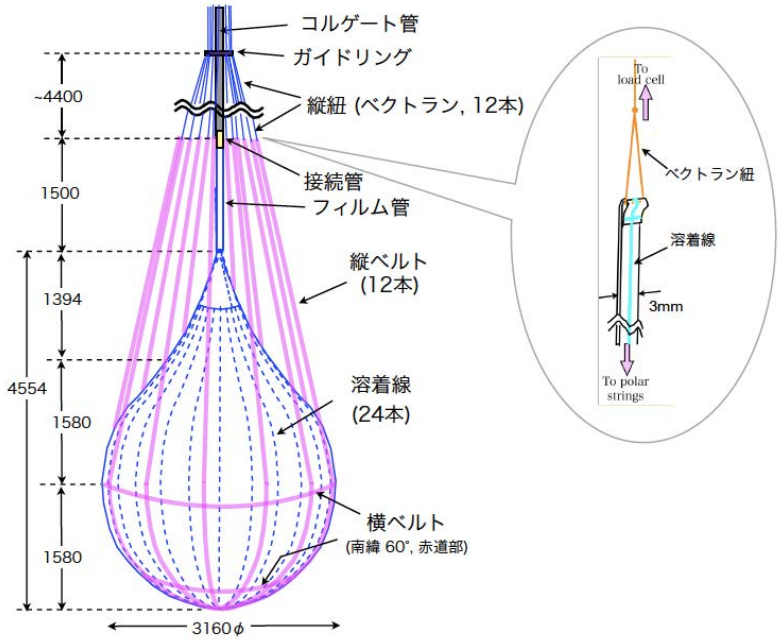

図 2.8　ナイロン製ミニバルーン。図は [34] より。

2.3　将来計画

現在、KamLAND-Zen 実験は未だ $0\nu\beta\beta$ 事象観測には至っていない。ニュートリノ有効質量への制限も KK-claim を排除したものの、次の感度目標である逆階層構造でのマヨラナニュートリノ探索を行うため、検出器のアップグレードによる実験感度の向上が計画されている。

現在 KamLAND-Zen 実験は第 2 フェーズとして順調にデータ収集中であるが、2016 年に Xe 量を 700 kg まで増量させる計画 (700 kg フェーズ) が進行中である。ミニバルーンについては Xe 増量に伴って半径を大きくする必要がある上、現在使用されているミニバルーン表面には、製作時および純化作業中に混入してしまった放射性不純物が付着しているため、よりクリーンなミニバルーンを再作成する。

将来的には検出器自体を大幅に改造して感度を高める「KamLAND2-Zen」も計画されている。KamLAND2-Zen における感度目標は、質量上限値 60 meV への到達である。エネルギー分解能を高めるため、集光ミラー [28] や LAB をベースとした液体シンチレータ [28]、高量子効率 PMT の研究がなされている。さらに方向検出が可能となる imaging device[37] や加圧環境下での実験 [38]、そして本論

文で扱う発光性バルーンの研究開発も進められている。

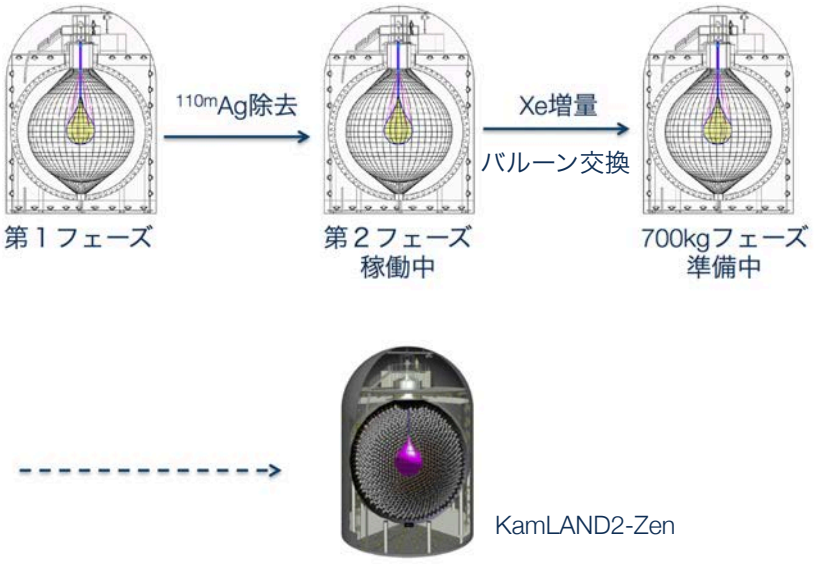

図 2.9　KamLAND-Zen 実験将来計画

第 3 章

KamLAND-Zen 実験のバックグラウンド

$0\nu\beta\beta$ イベントの発光は、放出された 2 つの電子によるシングルイベントであるため、バックグラウンドが実験感度に直結する。本章では KamLAND-Zen 実験における主なバックグラウンドについて触れ、またそれらを低減する方法について述べる。

3.1 $0\nu\beta\beta$ 事象に対するバックグラウンド

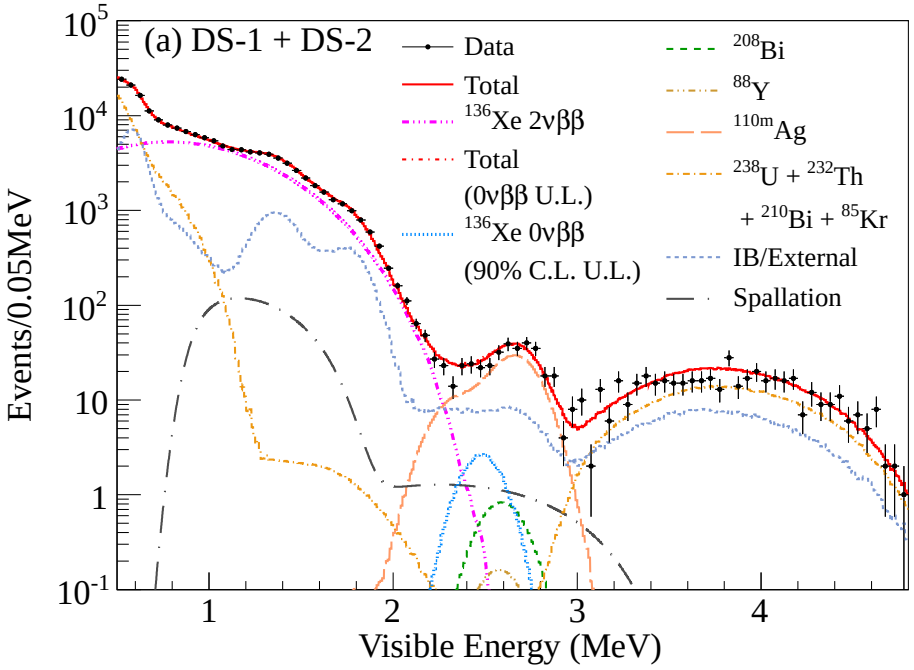

図 3.1　KamLAND-Zen 実験第 1 フェーズスペクトル [31]。

図 3.1 に KamLAND-Zen 実験第 1 フェーズで得られたエネルギースペクトルを示す。

$0\nu\beta\beta$ 事象探索に影響する 2.2 ~ 3.0 MeV 領域のバックグラウンドは、第 1 フェーズの際に問題となった ^{110m}Ag のほか、主に ^{10}C、^{11}Be、^{8}B solar ν、^{208}Tl、^{214}Bi、^{136}Xe $2\nu\beta\beta$ などが挙げられる。

予想外に混入したバックグラウンド：**^{110m}Ag**

この ^{110m}Ag は後述するバックグラウンドとは違い、第 1 フェーズで当初予想されていないものだった。^{136}Xe を輸送する際に原子核破砕によって生成され混入した可能性や、福島第一原発事故によって生成された ^{110m}Ag がミニバルーン作成時に表面に付着した可能性などが原因として考えられる。第 2 フェーズ移行時に液体シンチレータを蒸留純化することによって、この ^{110m}Ag バックグラウンドを 10 分の 1 以下まで低減することができた [30]。

宇宙線ミューオンによる原子核破砕生成核：**^{10}C**

地下 1,000 m に位置する KamLAND であっても、約 0.3 Hz で宇宙線ミューオンが検出されている。この宇宙線ミューオンによって液体シンチレータに含まれる ^{12}C の原子核破砕反応が起こり、$0\nu\beta\beta$ 信号領域にかかるスペクトルをもつ ^{10}C が生成される。MoGURA の導入によって ^{10}C 生成時に放出される中性子のタギングが可能となり、そのバックグラウンド除去効率は 90% となっている [36]。

宇宙線ミューオンによる原子核破砕生成核：**^{11}Be**

^{10}C と同様に宇宙線ミューオンによる ^{12}C の原子核破砕反応で ^{11}Be が生成されるが、イベント数は ^{10}C よりも少なく、現在のミニバルーン有効体積 (後述) と他バックグラウンドの信号数においては無視出来る値となっている。

太陽ニュートリノイベント：**^{8}B solar ν**

太陽内部における核融合連鎖反応 (図 1.3) により生成される ^{8}B が、逆ベータ崩壊を起こす事で電子ニュートリノが放出される。このニュートリノイベントを選択的に除去する事は非常に困難であるが、現在のミニバルーン有効体積 (後述) と他バックグラウンドの信号数においては無視出来る値となっている。

Xe-LS **中に含まれる放射性不純物**：**^{208}Tl**

^{208}Tl は 2.6 MeV の γ 線を出すために $0\nu\beta\beta$ の大きなバックグラウンドになると予想されていたが、ミニバルーン周囲の液体シンチレータ (KamLAND-LS) によって同時に放出されるベータ線が見えるために、3.7 MeV 付近にピークを持つ。そのため、^{208}Tl 量が多くならなければ $0\nu\beta\beta$ への影響は小さい。Xe-LS に含まれる放射性不純物を完全に除去しきることは困難であるが、フィルターや蒸留純化によってその寄与は無視できるところまで低減できている。

ミニバルーン素材に含まれる放射性不純物：**^{214}Bi**

ミニバルーン素材であるナイロンには、自然放射線核種である ^{238}U、^{232}Th、^{40}K 系列の核種が付着・混入している。ミニバルーン作成時の素材選定においてできるだけ混入量の少ないものを選んでいるが、特に ^{238}U 系列娘核である ^{214}Bi の出す 3272 keV の β/γ 線は $0\nu\beta\beta$ 付近にスペクトルをもつために無視できず (崩壊系列については付録 D 参照)、^{110m}Ag の除去後は最大のバックグラウンドとなる。

本研究の最終目的であるこの ^{214}Bi の除去については、3.2 節で改めて詳しく議論する。

^{136}Xe $2\nu\beta\beta$ のしみこみ

$0\nu\beta\beta$ 信号は理想的には図 1.7 のようにモノクロとなるが、検出器の分解能の分だけスペクトルは広がりを持ち、$2\nu\beta\beta$ スペクトルと重なりあう部分が出てくる。この $2\nu\beta\beta$ は原理的に除去することが不可能

なため、$0\nu\beta\beta$ と分離するにはエネルギー分解能を向上させる以外の方法は無い。$0\nu\beta\beta$ と $2\nu\beta\beta$ の信号分離のためにエネルギー分解能を向上させる検出器アップグレード計画も考えられている (2.3 節)。

3.2　本研究の位置づけ

本研究の最終目標は現在最大のバックグラウンドとなっているミニバルーンフィルムに由来する ^{214}Bi バックグラウンド除去を目的として、ミニバルーンにシンチレータ機能を付与し、$0\nu\beta\beta$ 事象探索の感度向上を図ることである。

3.2.1　^{214}Bi バックグラウンド

前節で述べたように、^{214}Bi の出す β/γ 線がマヨラナニュートリノ探索をする際に $0\nu\beta\beta$ スペクトルの大きなバックグラウンドとなりうるが、自然放射線核である ^{238}U の混入を完全に防ぐことは困難であり、その崩壊系列の娘核である ^{214}Bi も完全に取り除くことは不可能に近い。このように、バックグラウンド源となる核種を除去できないものについては、その信号自身がバックグラウンドであることを自己申告していれば解析的にバックグラウンドを除去できる。

さて、ミニバルーンフィルム素材由来の ^{214}Bi バックグラウンドを除去するためには、その崩壊系列を利用した遅延同時計測法を用いる。遅延同時計測法とは、比較的短い特定寿命で崩壊をするような核種に対して、先に崩壊した際に出される信号を先発信号、その娘核で出される信号を後発信号として捉え結びつけることで (タギング)、連続事象を特定するものである。^{214}Bi において考えられるタギングの組み合わせは ^{214}Bi - ^{214}Po (Tag1)、^{214}Pb - ^{214}Bi (Tag2) である (図 3.2、3.3)。

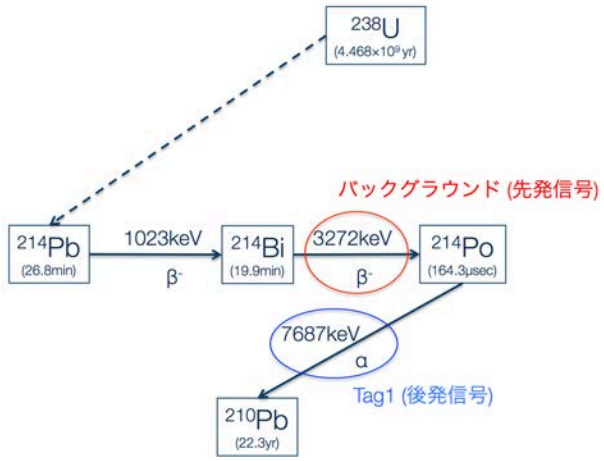

図 3.2　Tag1 による Bi-Po 遅延同時計測概念図。

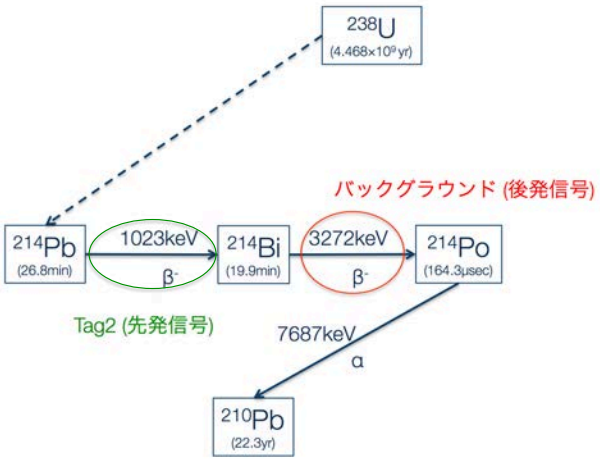

図 3.3　Tag2 による Bi-Po 遅延同時計測概念図。

Tag1 : ^{214}Bi - ^{214}Po

^{214}Bi による 3272 keV の β/γ 線を先発信号、^{214}Po による 7687 keV の α 線を後発信号として用いる。Tag1 は ^{214}Po の半減期が十分に短いために偶発信号が混入することは少なく、一般的な方法である [39]。Tag1 によるタギング効率は、先発・後発信号の重なりによる不感のみを考慮した場合は 99.97% であるが、^{214}Po の出す α 線がミニバルーンフィルムを透過する確率 (ϵ_α) とその後液体シンチレータで反

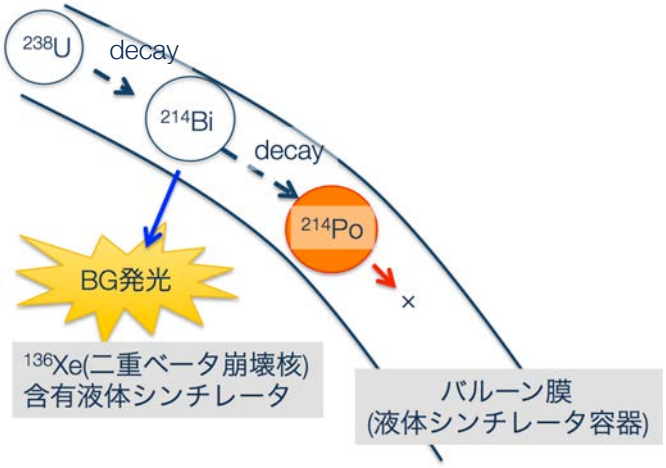

図 3.4　^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測イベントセレクション (Tag1)

応する確率 (エネルギー閾値を超える確率 (ϵ_β)) に依存し、現在用いられている 25 μm 厚ナイロン製ミニバルーン直近での Tag1 による ^{214}Bi 除去効率は 52.5% である [39]。

$$\epsilon_{\mathrm{Tag1}} = \epsilon_\alpha \times \epsilon_\beta = 52.5\% \tag{3.1}$$

Tag2 : ^{214}Pb **-** ^{214}Bi

^{214}Bi と比べて ^{214}Pb の半減期は 19.9 min と長いため、time window が 1 時間と長くなる。そのため偶発イベントを減らすにはさらに vertex セレクションが必要となる。Tag2 におけるタギング効率は、1 時間の time window と ^{214}Bi を中心に半径 40 cm の vertex セレクションをすることで 67.8% になる [39]。ただし、ミニバルーンフィルム素材に含まれる ^{40}K が $< 10^{-11}$ g/g を満たすことを要求している (ミニバルーン膜厚は 25 μm と仮定)。

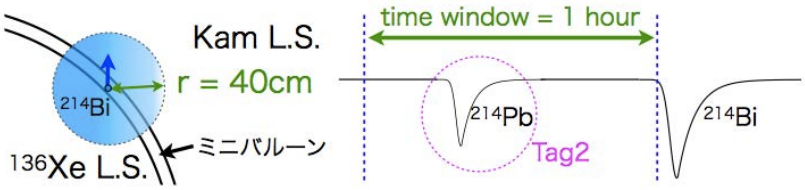

図 3.5　^{214}Pb - ^{214}Bi 遅延同時計測イベントセレクション (Tag2)。time window と vertex セレクション [39]。

3.2.2　**有効体積** (Fiducial Volume : FV) **カット**

上述した Tag1 および Tag2 を利用したバックグラウンド除去ではタギング効率は低く、十分な対策にはなっていない。一方、^{214}Bi バックグラウンドはミニバルーン膜付近に集中しているため、KamLAND-Zen 実験ではミニバルーン直近を実験データ解析に用いないようにする有効体積 (**F**iducial **V**olume : FV) を選択している。KamLAND-Zen 実験第 1 フェーズにおける FV は、ミニバルーン中心より半径 1.35 m である (ミニバルーン表面より約 20 cm 厚球殻を解析に用いない)。この FV カットによってミニバルーン素材由来の ^{214}Bi の信号が混入することを避けている (FV 決定方法については第 5 章のシミュレーションの際に述べる)。

この FV カットによって解析範囲から除かれているミニバルーン体積は

$$\frac{\mathrm{V_{all}} - \mathrm{V_{FV}}}{\mathrm{V_{all}}} = \frac{\frac{4}{3}\pi\,(1.54)^3 - \frac{4}{3}\pi\,(1.35)^3}{\frac{4}{3}\pi\,(1.54)^3} \approx 32.63\% \tag{3.2}$$

となり、ミニバルーン全体積の約 3 割が有効活用できていなかった。二重ベータ崩壊核である ^{136}Xe も約 3 割がマヨラナニュートリノ探索に使用できていないことになる。

KamLAND-Zen 実験第 2 フェーズにおける解析では、^{214}Bi の分布の濃淡によって FV 選択をしているが、多くの体積がカットされている点は上記と同様である。FV カットによって有効活用できない実験領域が存在してしまうこの問題は、2016 年から予定されている Xe-700 kg フェーズでも同様に起こる。^{214}Bi のタギング効率を改善することができれば、ミニバルーン直近における ^{214}Bi バックグラウンドを除去でき、すなわち FV をミニバルーン全体に渡って選択することができるようになる。

3.2.3　発光性バルーンフィルム

上述した Tag1 のタギング効率が高くならない一因として、飛程の短い α 線がミニバルーンフィルム上でトラップされ発光しないことにより、観測できないことが挙げられる。タギング効率改善には、ミニバルーン素材が α 線に対してシンチレーション光を出せばよい。本来であればミニバルーンフィルムでトラップされ観測できない α 線を観測できるようにすることで、^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測の後発信号 (^{214}Po の 7687 keV - α 線) を全て捉え、高効率での Tag1 でのタギングが可能となる。

本研究では、シンチレーション光を出すミニバルーンフィルム (以下「**発光性バルーンフィルム**」) に関して素材候補の検討を行い、発光性バルーンフィルムによって作成されるミニバルーン (以下「**発光性バルーン**」) の研究開発を行った。

第 4 章

発光性バルーン

4.1 発光性バルーンフィルムへの要求項目

要求項目は大別して 2 つあり、シンチレータという観点から求められるものと、現在のナイロン製ミニバルーン作成時に要求されたものと同様に KamLAND-Zen 実験ミニバルーン素材という観点から要求されるものである。

シンチレータとしての要求項目

発光量

発光性バルーン研究開発の目標は ^{214}Po の 7687 keV の α 線を捉えることである。そのため発光性バルーンフィルムは、7687 keV の α 線に対する発光量が KamLAND で検出するために十分に足る光量である必要がある。荷電粒子に対するシンチレータの発光においては、クエンチングと呼ばれる、見かけ上の光量 (visible energy) が小さく見える現象があるため (付録 A)、その補正項であるクエンチングファクターをかけた光量が検出器のスレッショルドをこえていなければならない。KamLAND のトリガースレッショルドはおよそ 300 keV であるので [35]、^{214}Po に対し、300 keV 以上の見かけ上の光量 (visible energy) を要求する。

発光波長

発光が液体シンチレータ中で吸収・減衰されないために、KamLAND-LS の発光波長と同一 (約 380 nm)、または KamLAND-LS の透過率の良い波長領域 (390 nm より長波長側) に発光波長を持つ必要性がある。

発光波形 (発光時間)

導入する発光性バルーンの発光波形と液体シンチレータの発光波形に違いがあれば、発光検出時に波形弁別法 (**P**uls **S**hape **D**iscrimination ; PSD) によってどちらが発光した光であるかを識別することが可能となる。

ミニバルーン素材としての要求項目

プソイドクメン (PC) 耐性

KamLAND-LS および Xe-LS の溶媒として含まれる PC(1,2,4-トリメチルベンゼン) は強い腐食性があり、バルーンフィルム素材の選定には制限がかかる。例えば、通常のプラスチックシンチレータを薄く加工してミニバルーンを作成する、ということが本研究における最もシンプルな発想であるが図 4.1 のように、通常のプラスチックシンチレータでは PC 耐性がなく、使用することができない。PC に対して溶け出しなどが起きないことを確認する必要がある。

図 4.1　プラスチックシンチレータ (左図) を 30 日間 PC に浸けておいたもの (右図)。どちらもブラックライトを当てている。PC 耐性のないプラスチックシンチレータはゲル状となり、使用に耐えない。

透過率

KamLAND-LS の発光波長および透過率、PMT の感度波長領域 (図 4.2) から 380∼420 nm における透過率が高ければ良い。KamLAND-Zen 用ナイロン製ミニバルーンの研究開発の際に要求されたフィルム素材透過率は 90% であるので [40]、本研究におけるフィルム透過率要求値は 90% 以上@380∼420 nm 波長領域とする。

溶着方法と引張破断強度

KamLAND-Zen 実験に用いているナイロン製ミニバルーンは、バルーン形状にするために計 24 枚のゴアを熱溶着してある。既存のナイロン素材で発光性バルーンを作成する場合は同様の方法で溶着できると考えられるが、別素材を利用する場合は、その融点や化学特性に合わせて溶着方法を再検討する必要がある。

またバルーン形状にした際にバルーンが破壊しないよう、十分な安全ファクターを考慮した引張破断強度が要求される。

まず、ミニバルーン内外の液体シンチレータの密度差に起因する、ミニバルーンフィルムに垂直にかかる力について考える。Toy model としてミニバルーンを半径 R [m] の球とすると、密度差 $\Delta\rho$ の環境下では、アルキメデスの原理から

$$F = \Delta\rho \cdot V \cdot g = \Delta\rho \cdot (\frac{4}{3}\pi R^3) \cdot g \text{ [N]} \tag{4.1}$$

だけの力がミニバルーン全体にかかる (g は重力加速度)。ミニバルーン表面積で割ることで、単位面積あたりにかかる垂直な応力 $P_\perp$ が求まる。

$$P_\perp = \frac{1}{3}\Delta\rho \cdot R \cdot g \text{ [Pa]} \tag{4.2}$$

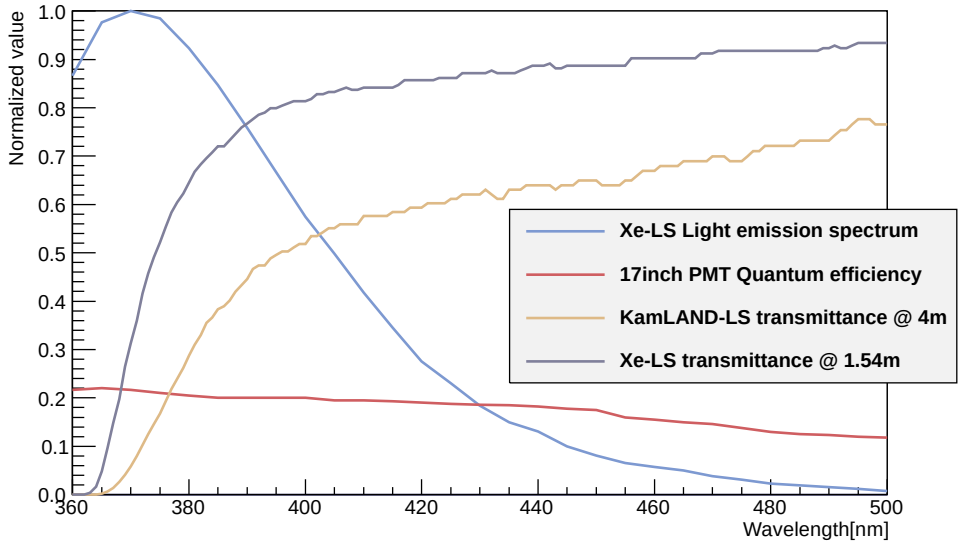

図 4.2　青線；Xe-LS 発光波長、赤線；PMT 量子効率、黄色；KamLAND-LS 透過率 (4 m 換算値)、紫線；Xe-LS 透過率 (1.54 m 換算値) の波長依存性のグラフ。透過率および量子効率は 100% を 1 とし、発光量は最大値を 1 として規格化してある。

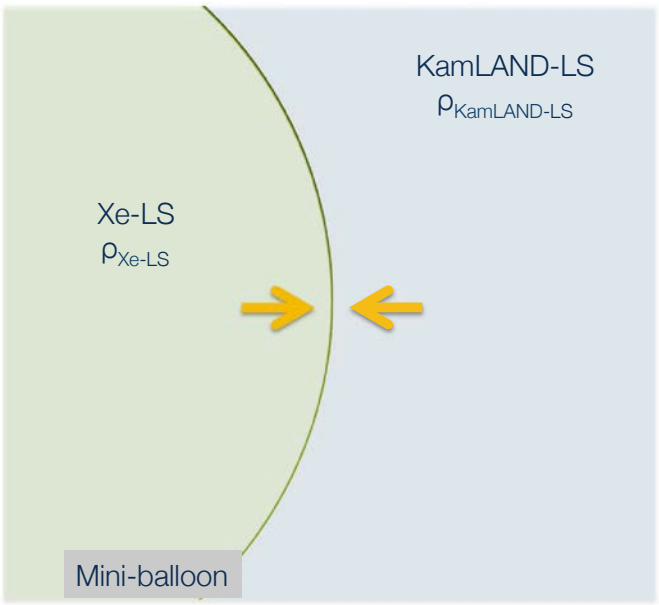

図 4.3　ミニバルーンフィルムに対して垂直に働く応力。$\rho_{\text{Xe-LS}}$ は Xe-LS の密度、$\rho_{\text{KamLAND-LS}}$ は KamLAND-LS の密度であり、$\Delta\rho \equiv |\rho_{\text{Xe-LS}} - \rho_{\text{KamLAND-LS}}|$。

次にフィルムに対して平行方向にかかる応力を求める。平行方向にかかる応力は、垂直方向の応力によってフィルムが引っ張られることによって生じる。フィルムに対して垂直方向にかかる力が最も大きくなるのは、バルーン内部の液体シンチレータ重量が付加されるバルーン底部である。ドームエリアからミニバルーン中心までの深度を H [m] とすると、底部にかかるフィルムに対して垂直な応力 $P_{\perp,\text{bottom}}$ は

$$P_{\perp,\text{bottom}} = \Delta\rho \cdot g \cdot (H + R) + P_0 \text{ [Pa]} \tag{4.3}$$

である (P_0 はドームエリアでの加圧)。半径 R [m] が十分大きいとして膜にかかる力の方程式を考えると

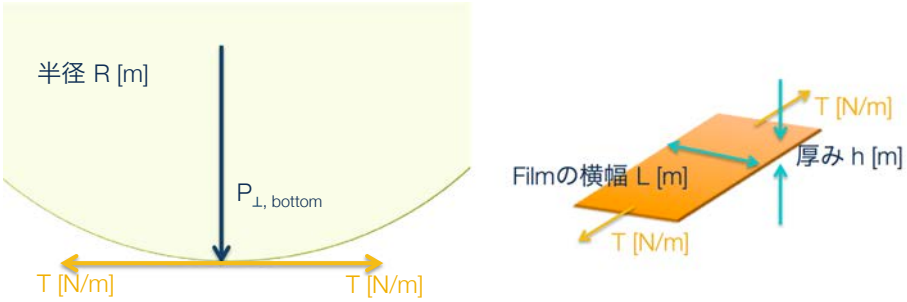

図 4.4　ミニバルーンフィルムに対して平行に働く応力。

図 4.4 の左図から

$$T_{\parallel} = \frac{1}{2} R \cdot P_{\perp} \ [\mathrm{N/m}] \tag{4.4}$$

だけの力がフィルム単位幅あたりにかかることになる (第一次近似)。よってフィルム厚を h [m] とすれば、フィルムに平行な引張破断応力は

$$P_{\parallel} = \frac{1}{2} \frac{R \cdot P_{\perp}}{h} \ [\mathrm{Pa}] \tag{4.5}$$

と求められる。したがって式 4.3 と式 4.5 から、ミニバルーン底部のフィルムにかかる平行方向応力 (引張破断応力) は

$$P_{\parallel,\mathrm{bottom}} = \frac{1}{2} \frac{R \cdot (\Delta\rho \cdot g \cdot (H + R) + P_0)}{h} \ [\mathrm{Pa}] \tag{4.6}$$

なお、上式で与えられる計算値はバルーン形状が真球であるとの近似をした上に、バルーン素材が一様均一で応力集中が起きないものと仮定したものである。精密計算を行うには応力テンソルによる計算をする必要があるが、実際にはバルーンフィルム素材の作成段階で完全に均一なものを作ることは困難で、さらに溶着部において歪みが存在することが容易に想像される。そのため、安全ファクターとして計算値の 10 倍を与え、バルーン導入時には破壊試験を行うことでその安全性を検証することとし、上記 Toy model での要求値を計算した。

現在のナイロン製ミニバルーン作成時の要求値を踏襲し [33]、10 N/cm とした。ここで扱っている [N/cm] 単位系は、フィルムの横幅 1 cm あたりに加わる力を示す。式 4.6 をこの単位系に直すと

$$P_{\parallel,\mathrm{bottom}} = \frac{1}{2} R \cdot (\Delta\rho \cdot g \cdot (H + R) + P_0) \ [\mathrm{N/cm}] \tag{4.7}$$

である。

含有放射性不純物量

自然放射線核種のうち、^{238}U 系列、^{232}Th 系列、^{40}K が $0\nu\beta\beta$ 事象探索の上でバックグラウンドとなりうる。そのため、ミニバルーンフィルム素材に対してもこれら核種の混入率をできるだけ低くする必要がある。本研究における含有放射性不純物の要求値は、現在のナイロン製ミニバルーン作成時に考えられた要求値[*1]を踏襲し表 4.1 の通りとする。

[*1] ^{238}U の含有放射性不純物量が $3 \sim 5 \times 10^{-13}$ g/g 程度であれば、^{214}Bi バックグラウンド数は ^{8}B solar ν バックグラウンドとほぼ同等まで低く、問題にはならない。しかし、ここまで含有放射性不純物を減らすことは非常に困難であり、$\sim 10^{-13}$ g/g のオーダーは理想値である。表 4.1 の ^{238}U 量は、あくまでナイロン製バルーンにおける許容値でしかない。

表 4.1　ミニバルーンフィルム素材への含有放射性不純物要求値 [33]。

放射性不純物	要求値
^{238}U	$< 3.0 \times 10^{-12}$ g/g
^{232}Th	$< 3.0 \times 10^{-12}$ g/g
^{40}K	$< 2.4 \times 10^{-11}$ g/g

要求値を満たすことで各放射性不純物を起因とするバックグラウンドを解析的に除去し、無視できるレベルまで低減することができる。しかし本研究の発光性バルーンでの元来の目的から、その発光量が十分であれば ^{214}Bi バックグラウンドは大幅に除去できるため、^{238}U の含有量が多少要求値を満たさずとも使用に足る (現在のナイロン製ミニバルーン中の含有放射性不純物については付録 C 参照)。

4.2　発光性バルーンフィルム素材選定候補

発光性バルーンフィルム素材の候補についてまとめる。

PPO **ナイロン**

現在用いられているミニバルーン素材と同じナイロンに、液体シンチレータにおいても発光剤として添加されている PPO(2,5 ジフェニルオキサゾール) を溶かしこんだものである (図 4.5、4.6)。ナイロンは現在も使用しているその実績から、薬品耐性や強度に関しては問題がない。発光性能に関しては PPO の添加で液体シンチレータと同様の発光特性が期待された。

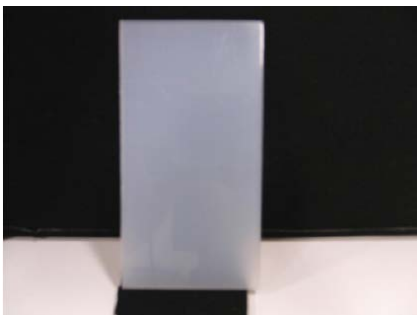

図 4.5　5 g/L の PPO を添加したナイロンブロック。作成は東洋紡。

図 4.6　PPO ナイロンと KamLAND-LS にブラックライトを当てた様子。

PET (**P**oly**E**thylene **T**erephtalate)

近年の研究により、PET がシンチレーション光を出すことが明らかになった [41][42]。薬品耐性や強度に優れ、これらの特性は発光性バルーンフィルム選定で優位である。PET は帝人社製の PET サンプル A(商品名は伏せさせていただく) を使用した。

PEN (**P**oly**E**thylene **N**aphthalate)

近年の研究により、PEN (**P**oly**E**thylene **N**aphthalate) がシンチレーション光を出すことが明らかになった [41][42]。PET と比べてさらに薬品耐性や強度に優れ、ガスバリア性も高い。本文中ではサンプルとして帝人社製の PEN サンプル A(商品名は伏せさせていただく) を使用した。

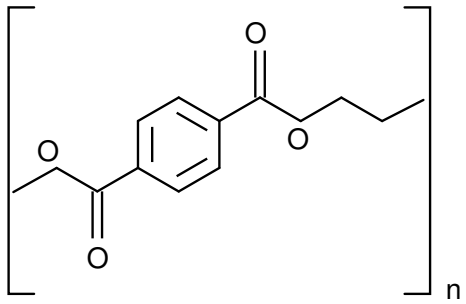

図 4.7　PET 化学構造式

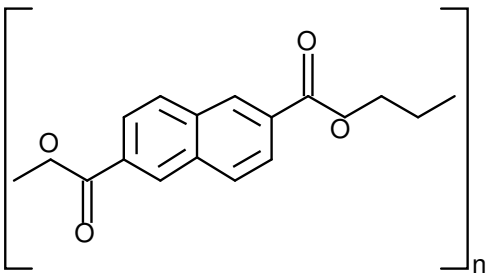

図 4.8　PEN 化学構造式

4.3　素材候補の評価

4.3.1　α 線発光の確認

まずはじめに素材候補のフィルムが α 線に対してシンチレーション光を発することを確認した。

実験方法

PMT 光電面上に素材候補のフィルムサンプル (25 mm×25 mm) を置き、2 mm 厚のアルミニウム製コリメータを挟んで ^{241}Am 線源を設置した。(図 4.9)。コリメータは、使用した線源が強かったため、イベントレートを下げる目的で使用した。^{241}Am は 5.486 MeV の α 線と約 60 keV の γ 線を放出する。ここでは ADC 値のエネルギーキャリブレーションおよび発光量への換算は行わずに、α 線に対してサンプルが発光するか否かの確認のみ行った。[*2]

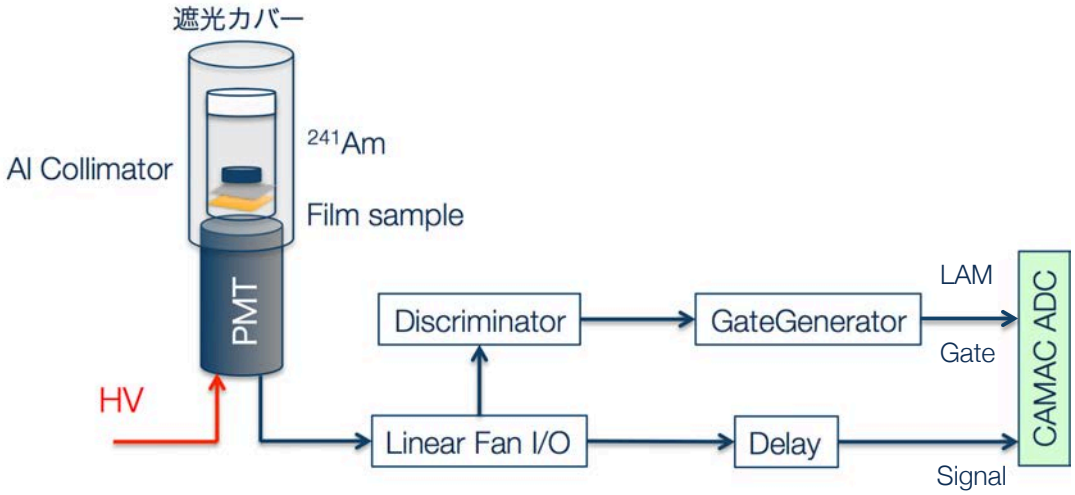

図 4.9　α 線発光確認のセットアップ概念図。塩化ビニール製のカバーにて遮光してある。

実験結果

図 4.10 に PEN サンプル A(125 μm 厚) の測定結果を示した。バックグラウンドと比較して明らかにピークがある。コリメータの代わりに同厚のアルミニウム板を挟んで測定するとピークが消えるため、たしかに α 線に対する発光であることがわかる。2 mm 厚のアルミニウムに対して 5 MeV 程度の α 線は十分止まり、数十 keV の γ 線は透過するため、ペデスタル横に立っている低エネルギーピークは ^{241}Am の約 60 keV の γ 線によるものである。図 4.11 に PPO ナイロン (1 mm 厚) の測定結果を、図 4.12 に PET サンプル A(1 mm 厚) の測定結果を示した。

[*2] エネルギーキャリブレーションおよび液体シンチレータ比の光量計算が困難な理由として、まずコリメータ中の 2 mm 厚空気層を α 線が飛ぶ間にエネルギーを落としてしまうことに加え、液体シンチレータに線源を浸けることを避けたかったからである。なお、液体シンチレータとの光量比較は Bi-Po 遅延同時計測法によって測定したが、その内容は後述する。

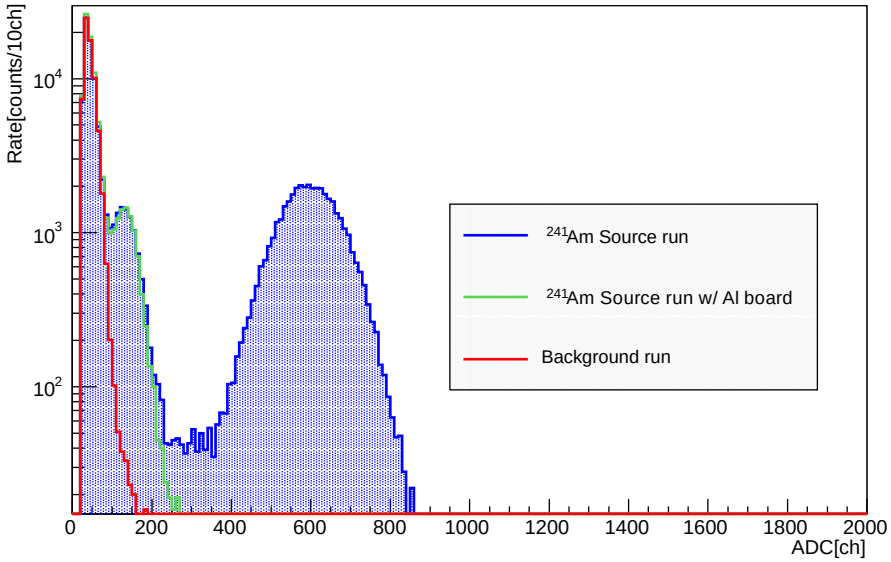

図 4.10　PEN サンプル A(125 μm 厚) の発光確認。青線は ^{241}Am 線源をおいてコリメータを挟んだ場合、赤線はコリメータのみで線源無しの場合のエネルギースペクトル。緑線は線源を置き、かつ穴の開いていないアルミニウム板を挟んだ場合のスペクトル。

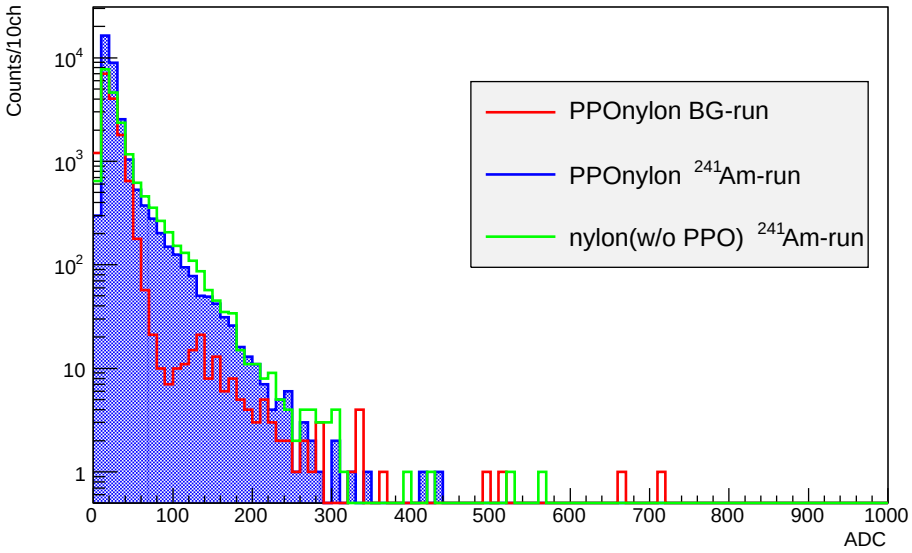

図 4.11　PPO ナイロン (1 mm 厚) の発光確認。青線は ^{241}Am 線源をおいてコリメータを挟んだ場合、赤線はコリメータのみで線源無しの場合のエネルギースペクトル。緑線は ^{241}Am 線源をおいてコリメータを挟んだ場合であるが、測定サンプルであるナイロンは PPO を溶かしこんでいないもの。

考察とまとめ

PEN サンプル A は確かに α 線によって発光することが確認された。

PPO ナイロンおよび PET サンプル A では発光は確認できなかった。PPO ナイロンはバックグラウンドと比較した際に 100 ADC-ch 付近に差が見られたが、PPO を含ませないナイロンで同様の実験を行ったところ図 4.11 の緑線の様になったため、添加した PPO による期待した発光スペクトルではない

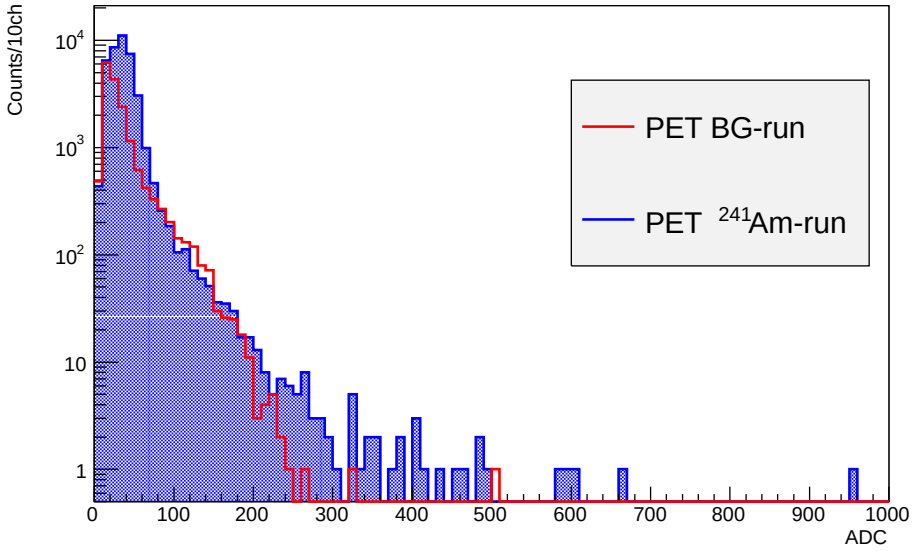

図 4.12　PET サンプル A(1 mm 厚) の発光確認。青線は ^{241}Am 線源をおいてコリメータを挟んだ場合、赤線はコリメータのみで線源無しの場合のエネルギースペクトル。

ことがわかった。また PPO ナイロンは透過率が悪く (付録 J)、フィルム内部で発光していたとしても検出できなかったと考えられる。PET サンプル A に関しては統計誤差をつけた場合にバックグラウンドとの有意な発光スペクトルは確認できない。PET は発光時の光子数が少ないため [42] に、発光量が不十分であったと考えられる。これ以降の評価項目に関しては PEN サンプル A のみについて扱う。

4.3.2　液体シンチレータ比での発光量の測定

実験方法

^{222}Rn の崩壊娘核である ^{214}Po の α 線による発光量で比較を行った。底面が平らな特注バイアル (付録 G) に PEN サンプル A を入れた後、ミネラルオイルにてバイアル-フィルム間の隙間およびバイアル-PMT 光電面間の隙間を埋めた。^{222}Rn を多量に含む空気をバイアル内に閉じ込めて BiPo 遅延同時計測によるイベント選択で ^{214}Po の 7,687 keV-α 線に対する発光量を測定した。PEN サンプル A はゴム手袋で表面が傷つかない程度に擦ることで静電気が帯電し (図 4.13)、^{222}Rn 崩壊娘核である ^{218}Po のイオン化したものが吸着され、^{214}Bi-^{214}Po の β/γ 線および α 線を捉えることができる。

比較する KamLAND-LS は ^{222}Rn を多量に含む空気でバブリングした後 (付録 G)、PEN サンプル A の厚みと同等になる分だけ特注バイアルに入れた。KamLAND-LS のバイアルに関してもバイアル-光電面間の隙間をオプティカルグリス代わりのミネラルオイルで埋めた。

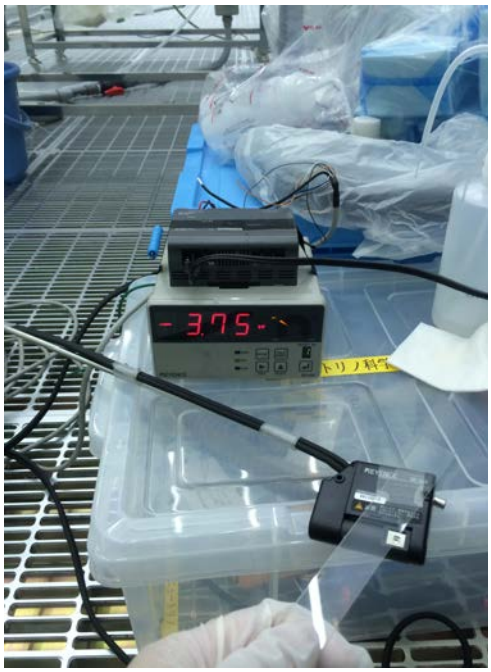

図 4.13　測定サンプルに帯電した静電気を測定したもの。負に帯電しており、プラスにイオン化する Po がフィルム表面に吸着される。西澤記念センターにて丸藤助教による。

図 4.14 の回路を用いて ^{214}Po に対する発光量測定を行った。Rn バブリングを行ってから放射平衡に達するまで 3 時間放置し、測定を行った (付録 G)。

本測定装置で得られる KamLAND-LS の ^{214}Po に対する α クエンチングファクターは $1/(12.5 \pm 0.539)$、それによる visible energy は 614 ± 26.9 keV と求められているので (付録 G)、KamLAND-LS および PEN サンプル A の delayed 側 (^{214}Po) のピーク値 ADC を比較することで PEN サンプル A の visible energy を計算することができる。

また提供していただいたサンプルの厚みが最大 125 μm であったため、8 枚重ねることにより実効的に 1 mm 厚分での発光量を測定した。8 枚重ねにした理由は、1 mm 程度の厚みがない場合、遅延同時計測の先発信号である ^{214}Bi の β 線によるエネルギー放出が少なく、発光しないためである。

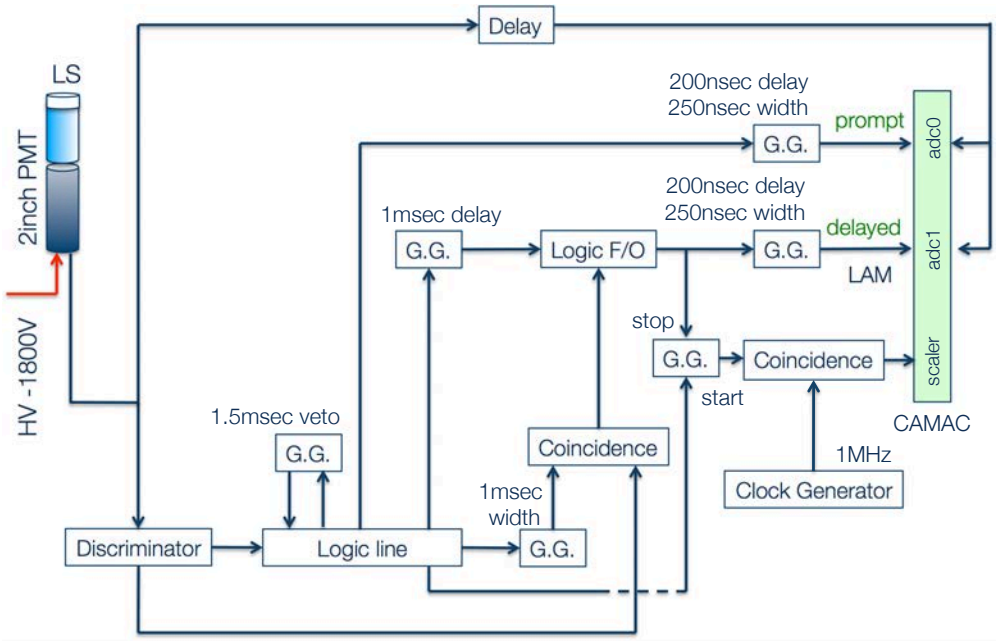

図 4.14　^{214}Bi – ^{214}Po 遅延同時計測論理回路。

実験結果

以下に KamLAND-LS(1 mm 厚) と PEN サンプル A の ^{214}Po に対する発光量測定結果を示す。

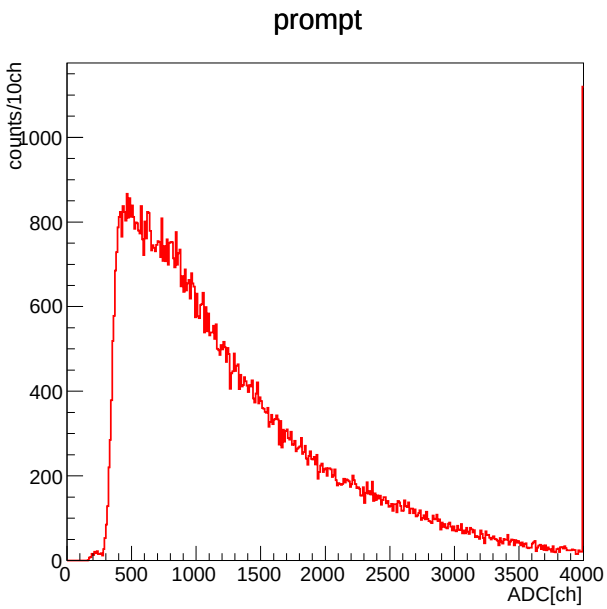

図 4.15　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による KamLAND-LS 発光量測定 prompt スペクトル。

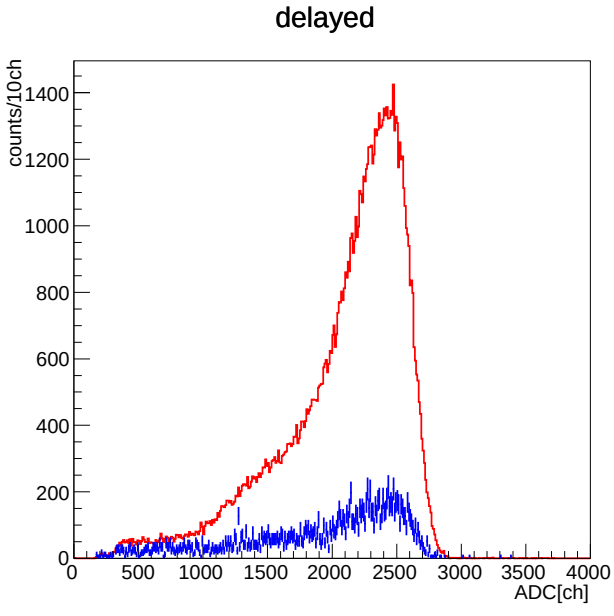

図 4.16　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による KamLAND-LS 発光量測定 delayed スペクトル。青線は偶発事象スペクトル。

prompt 信号と delayed 信号の時間差は式 4.8 でフィットした。

$$N = [p0] \cdot \exp(-\frac{t}{\tau_{1/2}}) + [p2] \tag{4.8}$$

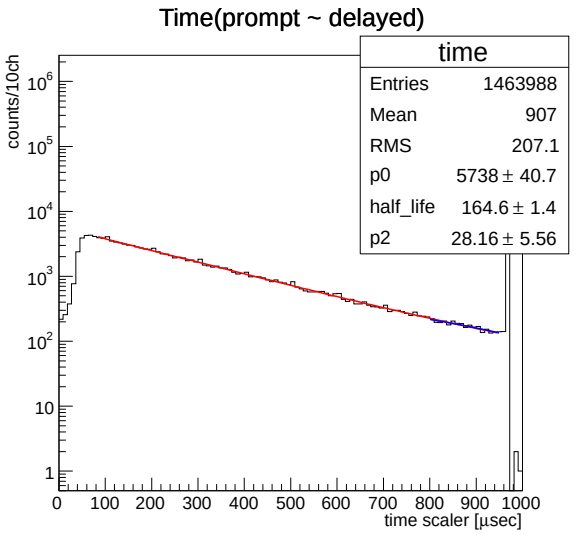

図 4.17　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による KamLAND-LS 発光量測定、prompt-delayed の時間差のスペクトル。

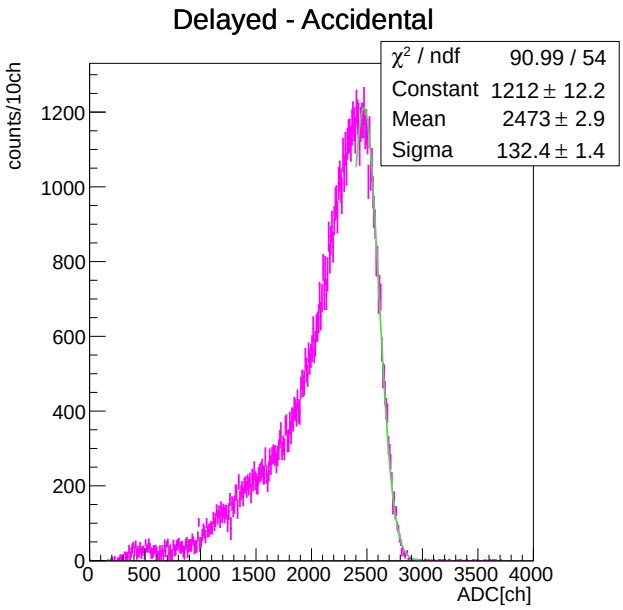

図 4.18　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による KamLAND-LS 発光量測定結果。delayed スペクトルから偶発イベントを差し引いたもの。

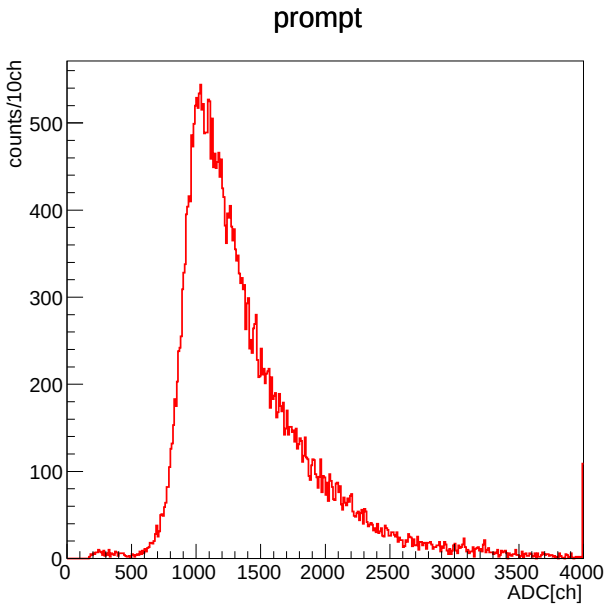

図 4.19　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による PEN サンプル A 発光量測定 prompt スペクトル。

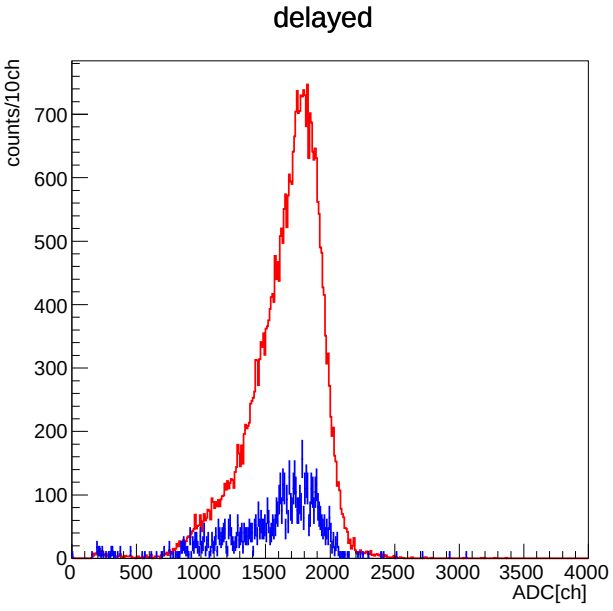

図 4.20　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による PEN サンプル A 発光量測定 delayed スペクトル。青線は偶発事象スペクトル。

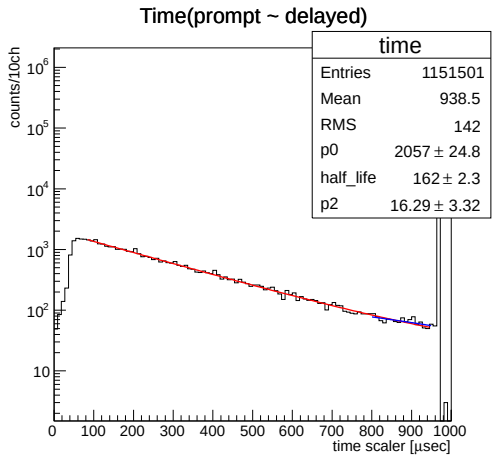

図 4.21　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による PEN サンプル A 発光量測定、prompt-delayed の時間差のスペクトル。

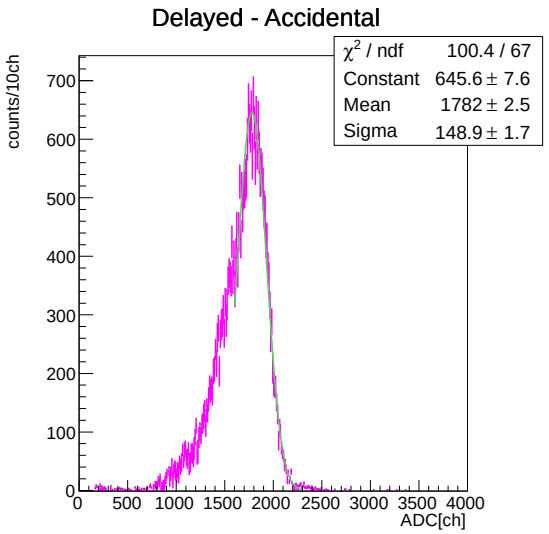

図 4.22　^{214}Bi-^{214}Po 遅延同時計測による PEN サンプル A 発光量測定結果。delayed スペクトルから偶発イベントを差し引いたもの。

ここで得られる $\tau_{1/2}$ が ^{214}Po の半減期である 164.3 μsec と一致していれば、本測定で ^{214}Bi(prompt) および ^{214}Po(delayed) のイベントを効率よく取得できていることになる。prompt と delayed の時間差が 90 nsec 未満のイベントに関しては回路の都合上データ収集がうまくいかないため、解析には用いていない。また 800 ∼ 1000 nsec のイベントは偶発イベントが多く含まれるため、その分を delayed 側エネルギースペクトルから差し引いている。 Delayed-Accidental のエネルギースペクトルを片側ガウシアンでフィットすることで、^{214}Po の 7687 keV-α 線に対する ADC 値を求めた。

考察とまとめ

KamLAND-LS の測定で得られた半減期は 164.6 ± 1.4 μsec で ^{214}Po の半減期である 164.3 μsec と比較して、イベント選択効率は良いことが分かる。また、PEN サンプル A で得られた半減期についても 162 ± 2.3 μsec と良い。

Delayed スペクトルが、エネルギーの低い方にテールを引いているが、これは α 線のエスケープによるものである。

図 4.18、図 4.22 から KamLAND-LS と PEN サンプル A の発光量比は

$$\frac{\text{PEN サンプル A の}^{214}\text{Po ピーク値 [ADC ch]}}{\text{KamLAND-LS の}^{214}\text{Po ピーク値 [ADC ch]}} = 0.721 \ \pm \ 0.00132 \tag{4.9}$$

であり、visible energy は

$$(\text{PEN サンプル A の}^{214}\text{Po に対する visible energy}) = 443 \ \pm \ 19.1 \text{ keV-visible} \tag{4.10}$$

となった。この結果は KamLAND-LS よりも発光が暗いことを意味するが、KamLAND のスレッショルドである 300 keV を十分超える値であるため、観測が可能であり、要求値を満たしている。

なお本測定ではフィルムを複数枚重ねたことにより、フィルム境界での乱反射・屈折等の影響が多少なり含まれている可能性がある。そのため、1 枚で 1 mm 厚のサンプルを用意することができれば、今回の結果よりも実験で観測される発光量は改善されうる余地がある。

4.3.3　発光波長の確認

実験方法

シンチレータの発光波長を測定するため、F-2000 型分光蛍光光度計 (日立) を用いた (図 4.23、4.24)。Xe ランプを光源とし、対象試料に励起光を照射して蛍光を PMT にて検出する仕組みになっている (図 4.25)。この測定器の波長正確度は、蛍光灯の Hg 輝線 435.8 nm において ±5 nm 以内である (F-2000 型分光蛍光光度計取扱説明書より)。

本研究で用いるシンチレータは十分に発光するため、PMT にかける HV は 400 V とした。本来この分光蛍光光度計には液体を測定するための固定ホルダーおよび石英セルが用いられているが、プラスチックシンチレータなどの固体物の蛍光測定の際には図 4.24 のような固体試料ホルダー (別注) を使用した。特に固体試料ホルダーを用いて測定する場合には、試料表面における励起・蛍光を観察することになる。そのため、表面で励起光が反射した光が蛍光スペクトルの中に出てくるため、この影響は差し引いて考察する必要がある。

図 4.23　F-2000 型分光蛍光光度計 (日立) 外観

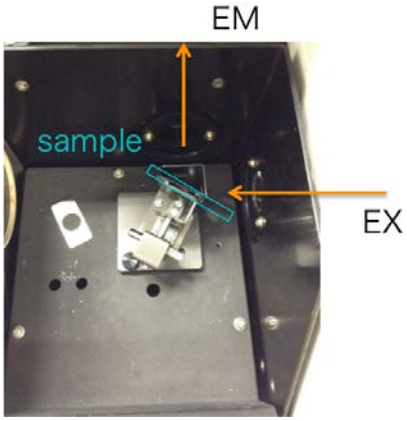

図 4.24　F-2000 型分光蛍光光度計 試料設置部。写真はフィルムの測定のために固定試料ホルダーをつけているが、液体について測定する際は石英セルおよびセル用のホルダーを用いた。

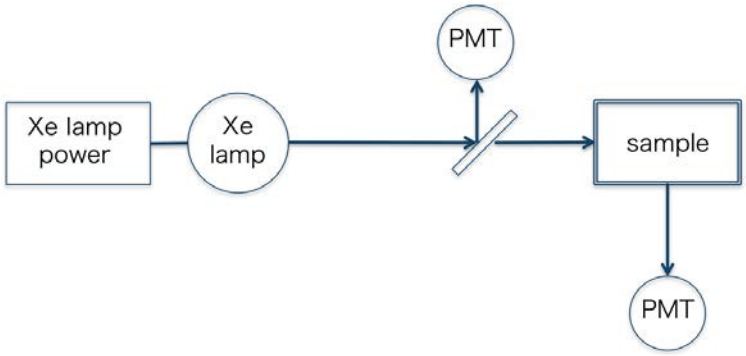

図 4.25　F-2000 型分光蛍光光度計 測定器内部概要

実験結果

図 4.26 に、波長 380 nm の励起光を入射させた際の実験結果を示す。この図より発光波長ピークはおよそ 430 nm であることがわかる。また、入射励起光の波長領域にピークが見えるが、これはサンプル表面で入射光が反射した反射光スペクトルである。

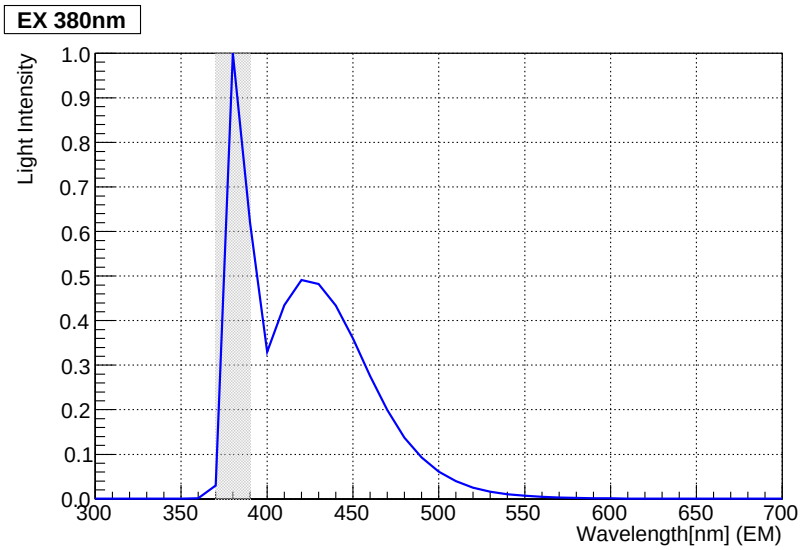

図 4.26　発光波長スペクトル。灰色部分は入射励起光の波長領域であり、試料表面での反射光によるピークが見られる。最大値を 1 として規格化してある。

考察とまとめ

PEN サンプル A は KamLAND-LS の透過率の良い波長領域に、発光波長ピークを持つことが確かめられた。

4.3.4　発光波形の確認

シンチレーション光の減衰曲線は、その蛍光と燐光の遅速２成分からなり (図 4.27)、式 4.11 を満たす [43]。本実験では、この遅速成分それぞれについての時定数を求める。

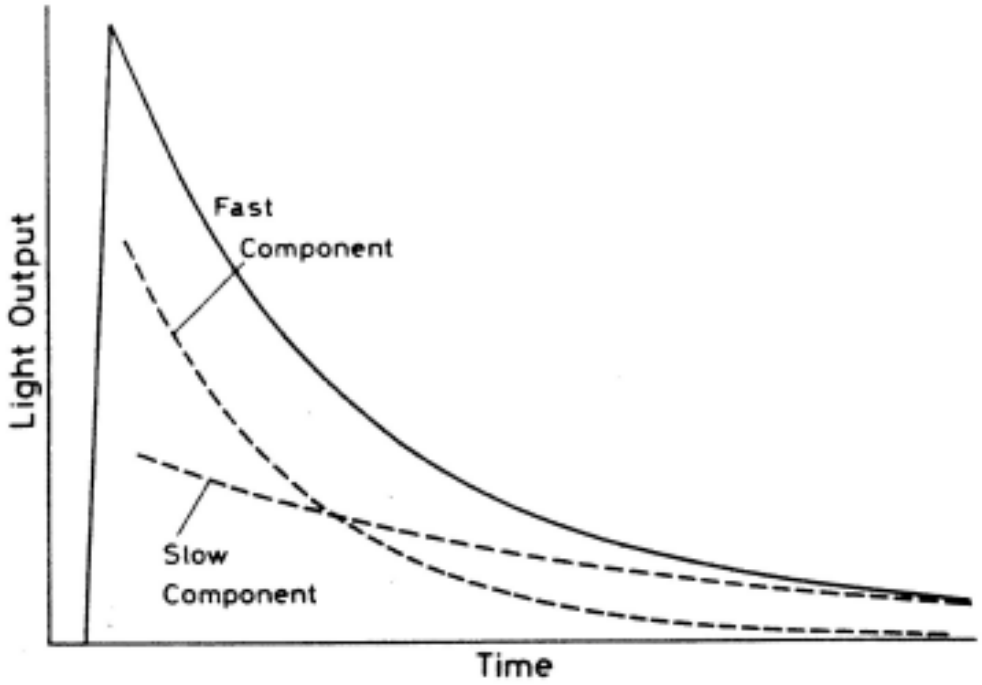

図 4.27　シンチレーション光の減衰曲線 [43]

$$N(t) = A\exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) + B\exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) \tag{4.11}$$

実験方法

PEN サンプル A に ^{241}Am をアルファ線源として当てて、デッドタイムフリーデータ収集回路 MoGURA(**Mo**dule for **G**eneral **U**se **R**apid **A**pplication) を用いて波形取得を行った (MoGURA については参考文献 [36] 参照)。本測定ではサンプリングレートの高い P ゲインにて波形取得をしている (表 4.2)。 得られた波形からチャージ積分を行いチャージヒストグラムを作成、アルファ線イベントである

表 4.2　各ゲインチャンネルの設計値 [36]

Gain ch	P gain	H gain	M gain	L gain
サンプリングレート	1 GHz	200 MHz	200 MHz	200 MHz
電圧幅	+5mV ∼ −20mV	+25mV ∼ −100mV	+250mV ∼ −1V	+2.5mV ∼ −10V
分解能	0.1 mV	0.5 mV	5 mV	50 mV
増幅率	×120	×24	×2.4	×0.24

ピークから $\pm 1\sigma$ 以内のチャージを持つイベントをアルファ線のイベントとした (図 4.29)。ここから得ら

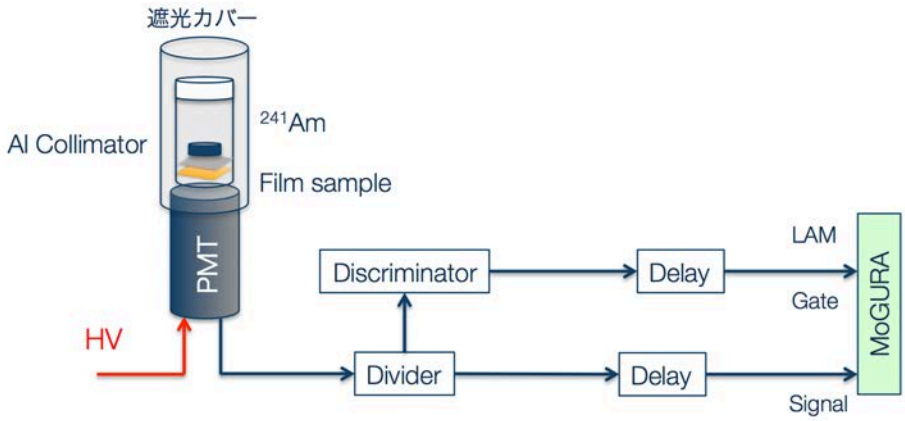

図 4.28　MoGURA による waveform 取得用回路

れたアルファ線イベントの波形をすべて重ねあわせて平均値をとることによりノイズによる波形の乱れをキャンセルし、式 4.11 でフィットを行った (図 4.30)。

実験結果

図 4.29 にチャージヒストグラムを、図 4.30 に波形のフィッティング結果を示す。

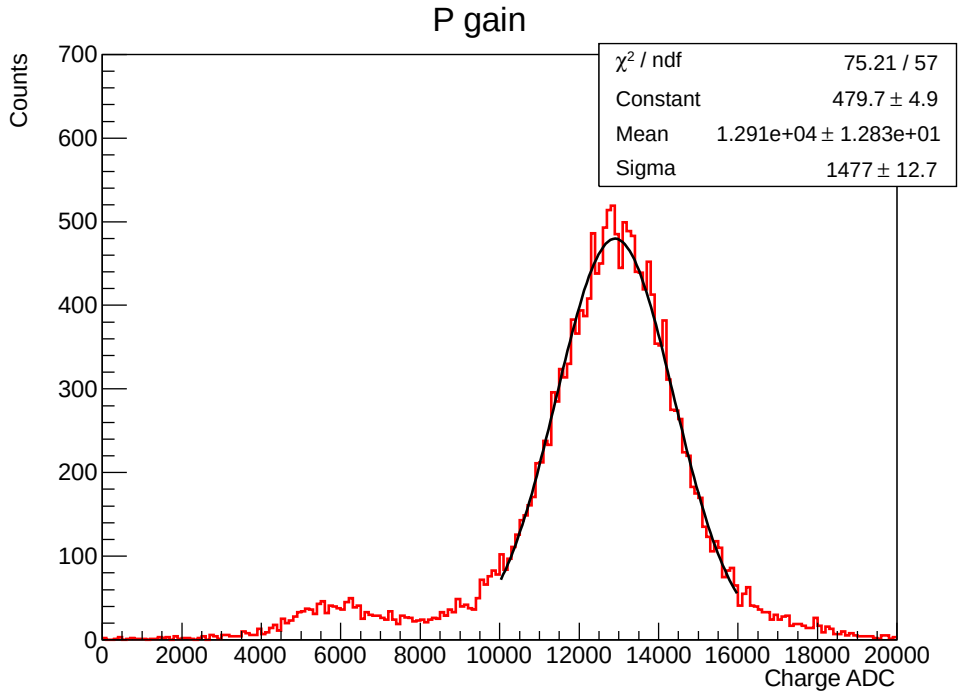

図 4.29　チャージヒストグラム。

考察とまとめ

得られた遅速成分の時定数を表 4.3 にまとめた。なお、KamLAND-LS の時定数は γ 線に対するもので、本実験で求めた PEN サンプル A の時定数は α 線に対するものである。液体シンチレータとは明ら

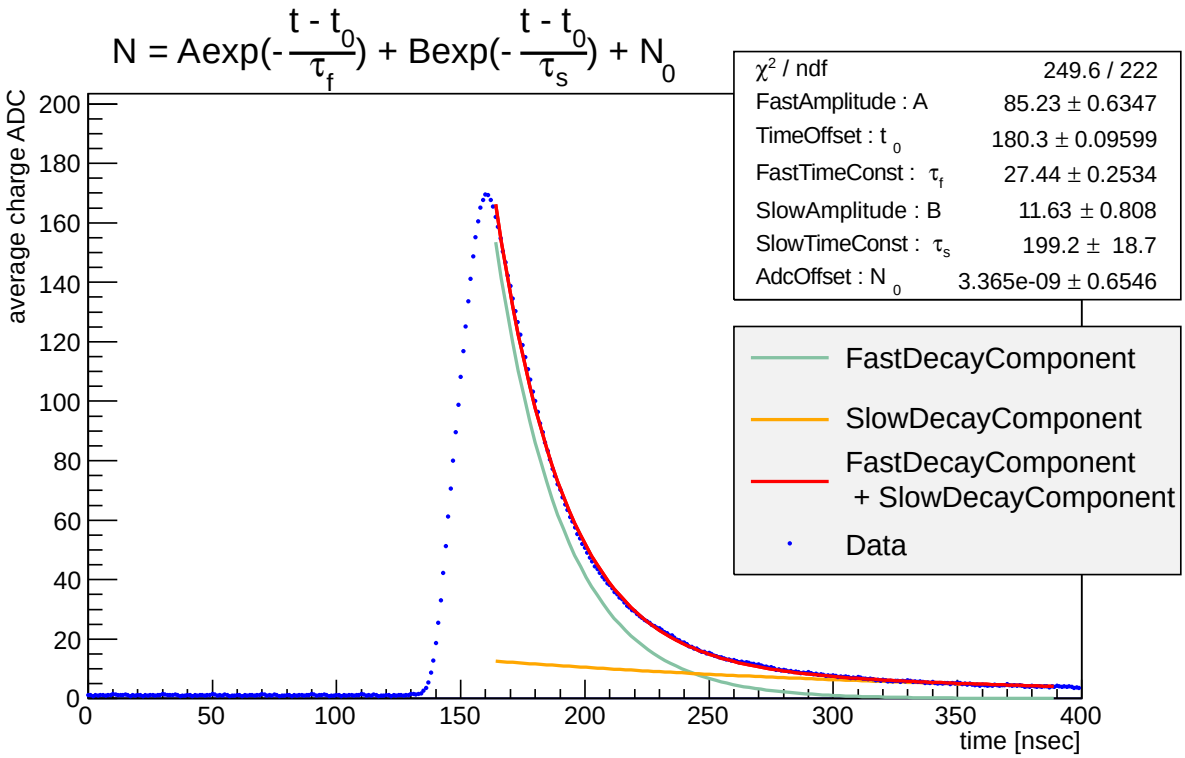

図 4.30　フィッティング結果

かに波形が異なり、PEN サンプル A の方が遅い成分が多く、将来的に波形弁別法 (PSD) が利用できる可能性があることがわかった。

表 4.3　時定数まとめ。KamLAND-LS の時定数は参考文献 [44] より。

–	時定数 (遅い成分)　[nsec]	時定数 (速い成分)　[nsec]	遅い成分/速い成分
PEN サンプル A	199.2 ± 18.7	27.44 ± 0.2534	7.259 ± 0.685
KamLAND-LS	8.6	4.0	2.15

4.3.5　PC 耐性の評価

腐食性のある PC(プソイドクメン) に対する耐性を評価した。

実験方法

PEN サンプル A を 120 ml の PC のバイアル内に入れ、45 ℃恒温槽下で加速劣化試験を行った。アレニウスの式により化学反応速度が 8 倍になるため、長時間 PC に浸した場合の評価をすることが可能である (付録 H)。本研究では恒温槽内で約 2 ヶ月保管したため、実質 16 ヶ月間 PC に浸した場合の反応ををみることができる。

PEN サンプル A が PC に溶け出した場合、PC 透過率が変化する。ここでは加速劣化試験後の PEN サンプル A 入り PC と PEN サンプル A 無し PC の透過率を比較することで、PEN サンプル A の PC 耐性を評価した。PC 透過率はシクロヘキサンをベースラインにとり、日立ハイテク社のダブルビール型分光光度計 U-3900 を用いた (図 4.31、付録 B)。

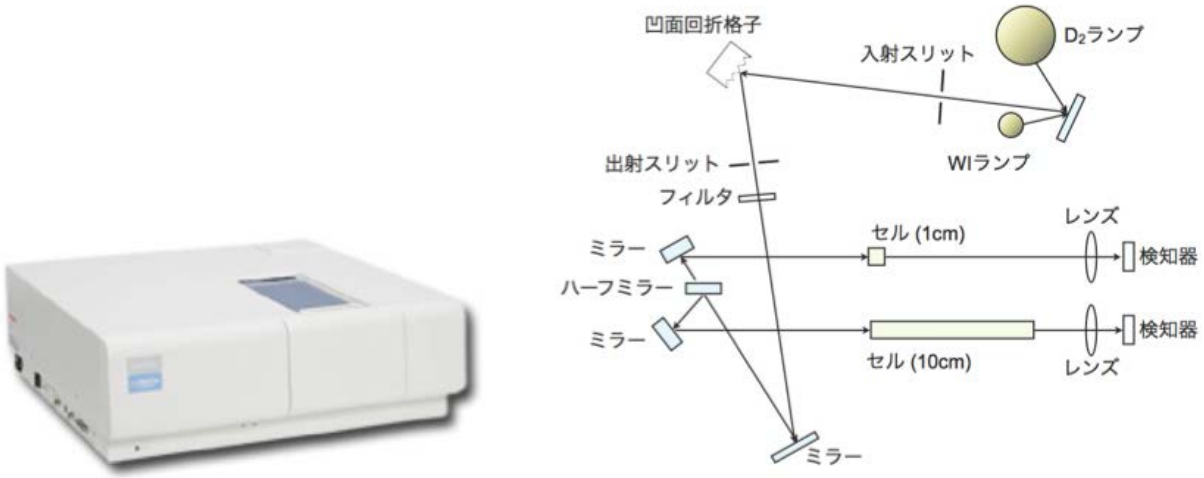

図 4.31　分光光度計 U-3900(左) とその構造 (右) [33]

実験結果

図 4.32 に PEN サンプル A 有無での 9 cm 長透過率を示す。また、式 4.12 に従って比を取り、PEN サンプル A を入れたことによる PC 透過率の変化度を図 4.33 に示した。

$$(\text{変化度}) \equiv \frac{\text{PEN サンプル A を入れて恒温槽保存した PC の 9 cm 長透過率}}{\text{PEN サンプル A を入れず恒温槽保存した PC の 9 cm 長透過率}} \tag{4.12}$$

考察とまとめ

± 0.5% の測定誤差の範囲内で PC 透過率に変化は見られず、PEN サンプル A 自体も色・形状ともに変化はなかった。KamLAND-Zen 実験のミニバルーン素材として十分に耐えうる PC 耐性を持っていると言える。

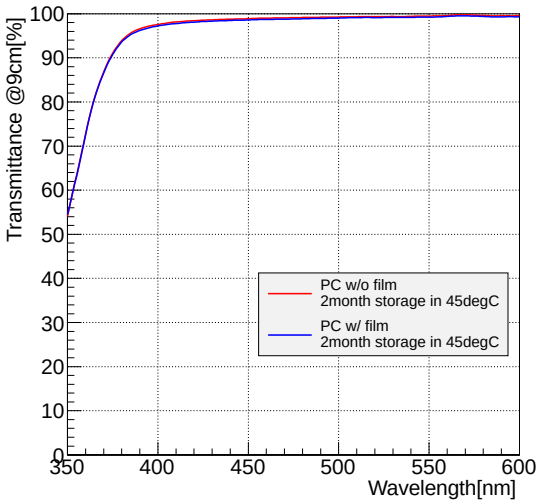

図 4.32　PEN サンプル A 無しの PC の 9 cm 長透過率 (赤)、PEN サンプル A 有りの PC の 9 cm 長透過率 (青)。どちらも恒温槽内にて加速劣化させたもの。

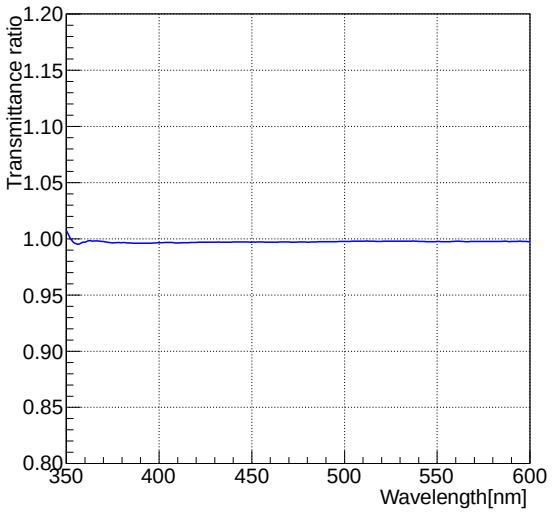

図 4.33　PEN サンプル A 有りの PC の 9 cm 長透過率 / PEN サンプル A 無しの PC の 9 cm 長透過率。

4.3.6　透過率の評価

実験方法

分光光度計 U-3900(図 4.31、付録 B) を用い、図 4.34 のようにクリップでフィルムを固定し、液体シンチレータ中でのフィルムサンプルの透過率を測定した。なお実験に使用した Xe-LS には Xe は溶解させていないため、以下では明示的に「デカン-LS」と呼称する。

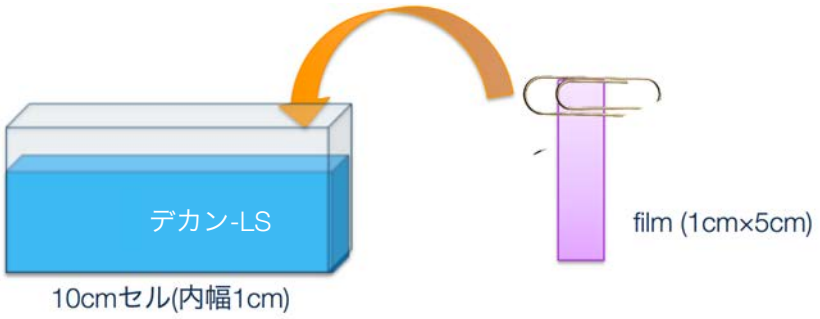

図 4.34　クリップにてフィルムを固定しデカン-LS を満たした 10 cm セルに入れる

実験結果

PEN サンプル A(50 μm 厚) のデカン-LS 中透過率測定結果を図 4.35 に示す。

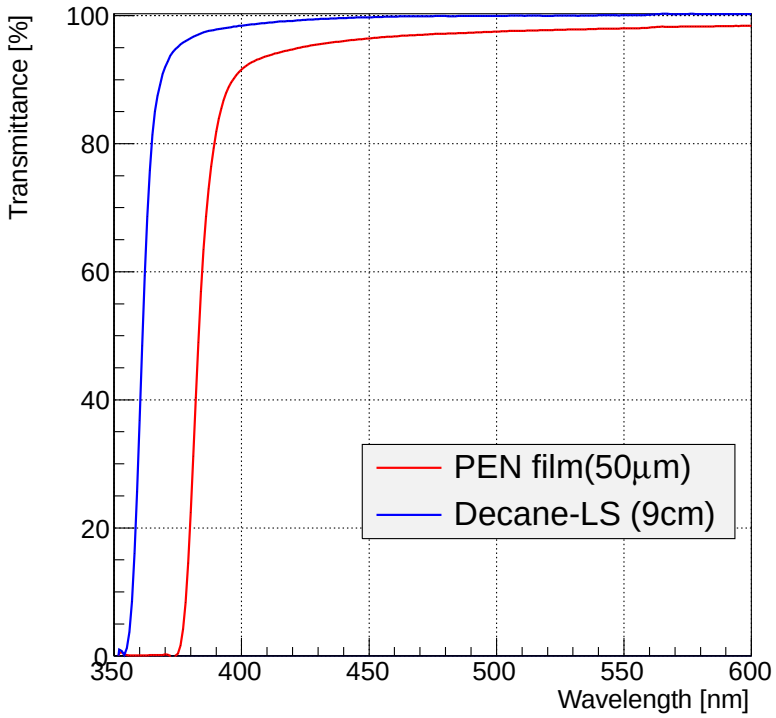

図 4.35　シクロヘキサンに対するデカン-LS の 9 cm 長透過率 (青)、デカン-LS 中の PEN サンプル A50 μm 厚透過率 (赤)

考察とまとめ

PEN は化学特性由来の吸収ピークがあるために 390 nm より短波長側では透過率が悪くなっているものの、400 nm より長波長側では 90% 以上の透過率を実現している。実際に使われているナイロン製バルーンの厚さは 25 μm であるから、付録 B より本測定の結果を換算する。これにより、25 μm 厚の PEN サンプル A では 93% 程度の透過率を持つことが計算によって求められる。

$$T_{(25\ \mu\text{m 厚での換算値})} = T_{(50\ \mu\text{m 厚での測定値})}^{\frac{25\times10^{-6}}{50\times10^{-6}}} \tag{4.13}$$

要求値をクリアしてはいるが、低い透過率は集光率の低下およびエネルギー分解能の低下に直結するため、製造工程の改良などによってより高透過率を実現することが望まれる。

4.3.7　溶着方法の検討

PEN の融点は 265~280 ℃と高く、現在のミニバルーン製作で用いたインパルス溶着 (熱溶着) の使用は困難かと思われたが、フィルムの厚みが非常に薄いため、熱溶着機でのインパルス溶着が可能であることがわかった[*3]。

インパルス溶着には卓上シーラー「NL201-J」(石崎電機工業) を用いた (図 4.36)。溶着機には溶着時間のタイマーがついており、メモリを最長の 8 にセットして溶着を行った。以降に述べる熱溶着したフィルムサンプルは、本節で紹介した装置・設定によって溶着されたものである。

図 4.36　卓上シーラー「NL201-J」

図 4.37 にリークチェック用にコの字型にインパルス溶着した PEN サンプル A を示した。

図 4.37　インパルス溶着した PEN サンプル A50 μm 厚サンプル

[*3] 付録 I に超音波溶着法による溶着実験を記した。融点が高くとも溶着できる方法として注目したが、熱溶着機でも PEN を十分溶着できることがわかったため、本文からは割愛した。

4.3.8　溶着部の引張破断強度の評価

溶着部が最も強度が低いと考え、前節で扱ったインパルス溶着によって溶着された PEN サンプル A について溶着部における引張破断強度測定を行った。

実験方法

溶着したフィルムサンプルを幅 1 cm× 長さ 3 cm の長方形に切り取り、引っ張りながらその時に試験片にかかる応力をフォースゲージ「ZTA-500」(イマダ) にて測定した (図 4.38)。本測定で得られた値は、その試験片形状の都合上つかみ具部分で余分な力が加わり切れてしまうため、下限値である (付録 E 参照)。

図 4.38　デジタルフォースゲージ「ZTA-500」と計測スタンド「MX2-500」。どちらもイマダ社製。

実験結果

図 4.39 にインパルス溶着によって溶着したフィルムの試験片に対する引張破断強度試験結果を示した。降伏点到達前にフィルムの溶着線端で破断してしまったが、その強度は要求値 10 N/cm を満たしており、53.7 N/cm だった。式 4.6 より実機バルーンである 25 μm 厚に換算すれば、PEN サンプル A25 μm 厚での強度はおよそ 27 N/cm であり、やはり要求値を満たしている。

$$P_{(25\ \mu\mathrm{m}\ \text{厚での換算値})}\ [\mathrm{N/cm}] = P_{(50\ \mu\mathrm{m}\ \text{厚での測定値})} \times \frac{25 \times 10^{-6}}{50 \times 10^{-6}} \tag{4.14}$$

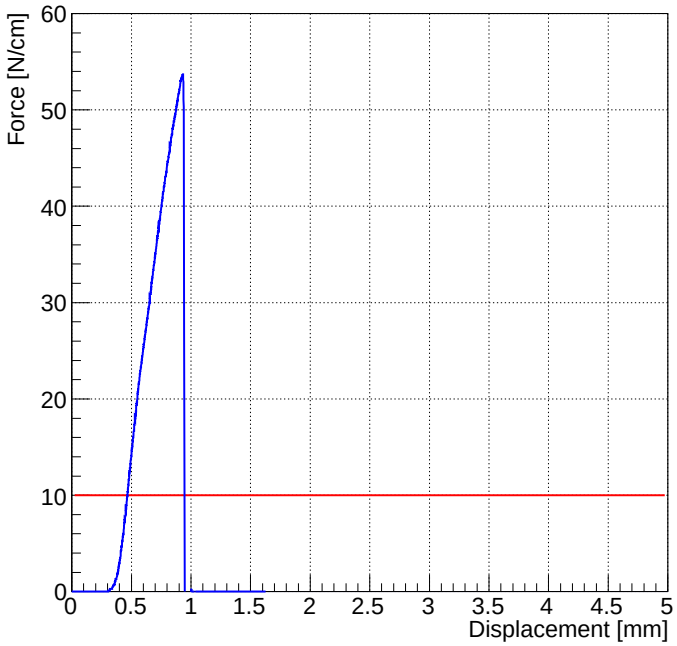

図 4.39　インパルス溶着した PEN サンプル A の引張破断強度試験結果。赤線 (10 N/cm) は要求値である。破断点は (Displacemnt, Force)= (0.93, 53.7)。

考察とまとめ

溶着部における強度が要求値を満たしたため、力学的な観点から PEN フィルム製ミニバルーンを作成できる見通しが立った。

4.3.9　溶着部のリークチェック

実験方法

サンプルフィルムをコの字型の袋になるように溶着し、中にリークチェック用の赤色のスプレーを吹き付け、溶着部からの染み出しがないかを確認した。

図 4.40　リークチェックに用いたスプレー

実験結果

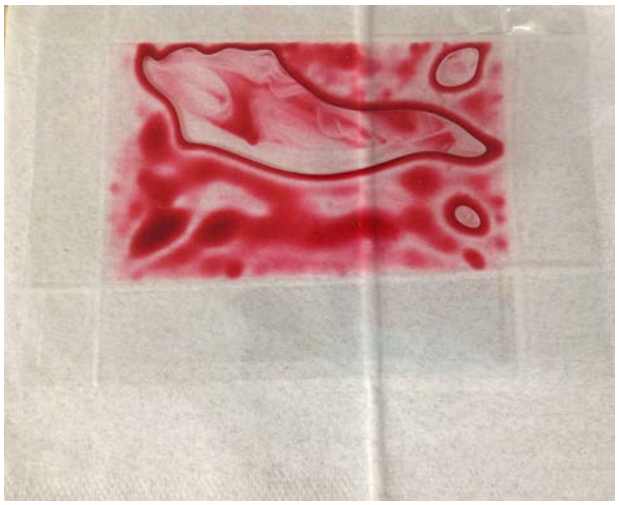

図 4.41　インパルス溶着部のリークチェック

図 4.41 にリークチェックの結果を示した。

考察とまとめ

溶着線上に赤色は見当たらずリークは存在していないため、溶着に問題はないと言える。

4.3.10　含有放射性不純物の評価

測定方法

本測定は外部の測定機関 (NTT アドバンストテクノロジ株式会社) に依頼した。

分析依頼をしたサンプルは PEN ペレット (図 4.42) および 125 μm 厚の PEN サンプル A である[*4]。

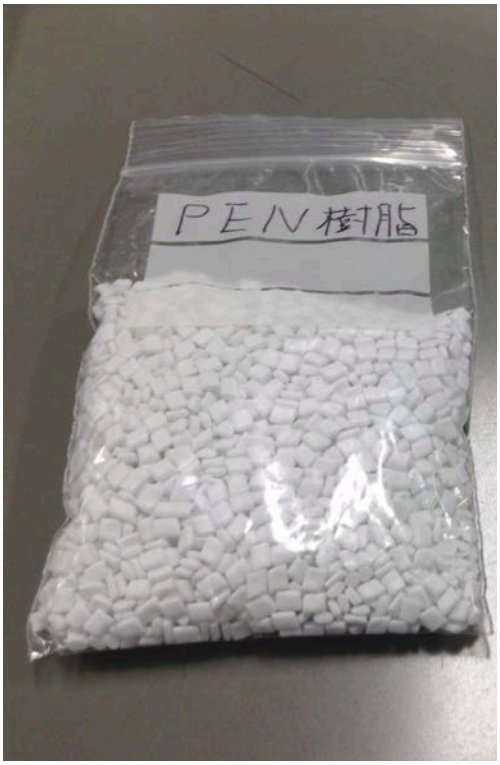

図 4.42　PEN ペレット

前処理としてペレットは超純水 (流水) にて 30 分間洗浄した後、105 ℃で乾燥させ、試料を秤量し、灰化処理を施した。灰化後に灰分を白煙処理し、酸溶解して得られた溶液をフレーム光度分析 (K) および ICP-MS(^{238}U、^{232}Th) で測定した。フィルムサンプルについては、細かく裁断した後、ペレットの操作と同様の処理を施した。

- (ICP-MS) **法**

  プラズマによって測定サンプルをイオン化させ、高感度で質量分析を行う。周期表上のほとんどの元素を同時測定可能であり、質量分析であるので同位体比測定ができる。Ar をイオン化源としているため、Ar 由来のイオンの質量数に重なるような質量数を持つ元素 (K など) に対しては検出下限が悪くなる。測定条件を表 4.4 に示す。

- **フレーム光度分析法**

  炎色反応をを利用し、輝線スペクトルの波長・強度により元素の定性・定量を行う。特に励起エネルギーの小さいアルカリ金属やアルカリ土類金属の分析に用いられる。測定条件を表 4.5 に示す。

[*4] ペレットでの分析によって、その素材自体に含まれている放射性不純物を測る。フィルム状に作成した製品も分析することで、生産ライン上で付着する不純物量も評価ができる。分析には相応の質量が必要だったため、ここでは 50 μ 厚ではなく 125 μm 厚のサンプルを分析依頼に出した。

表 4.4　ICP 質量分析の測定条件

装置	Agilent Technologies 社製 7500 型 ICP-MS
測定質量数	Th 232amu、U 238amu
(プラズマ条件)	
RF パワー	1600 W
キャリアガス	0.70 L/min
メイクアップガス	0.90 L/min
(データ処理パラメータ)	
繰り返し測定	3 回
積算時間	ポイント毎 1 秒、質量数毎 3 秒

表 4.5　フレーム光度分析測定条件

装置　バリアン社製	SpectrAA-55B
測定波長	K 766.5 nm

測定結果

表 4.6 に ^{40}K、^{232}Th、^{238}U の含有量を示した。

表 4.6　含有放射性不純物量分析結果。^{40}K については測定結果とその天然存在比 0.0117% から計算によって求め、括弧内に示した。

	^{238}U [10^{-12} g/g]	^{232}Th [10^{-12} g/g]	K(^{40}K) [10^{-12}g/g]
PEN ペレット	25	< 5	$< 0.1 \times 10^3$ (< 0.0117)
PEN サンプル A(125 μm 厚)	36	< 5	0.2×10^3 (0.0234)

考察とまとめ

^{40}K は要求値 ($< 2.4 \times 10^{-11}$ g/g) を十分満たしており、^{232}Th は測定下限値であった。

^{238}U の含有量が要求値 ($< 3.0 \times 10^{-12}$ g/g) と比べて大きいが、発光性バルーンが実現すれば ^{238}U 系列の ^{214}Bi バックグラウンドは除去可能となるため、問題ないと考えられる。

4.3.11　ガスバリア性の評価

本研究においては、実験設備の都合上実験することができなかったが、KamLAND-Zen 実験導入に際してはガスバリア性も重要となる。Xe-LS に溶解させた Xe がミニバルーン膜を透過して KamLAND-LS 側へ流出した場合に実験感度低下を招く。表 4.7 から、現在使用されている「ナイロン 6」よりも「PET(**P**oly**E**thylene**T**erephthalate)」の方が炭酸ガス・酸素透過率が低く、PEN(**P**oly**E**thylene**N**aphthalate) は PET よりもガス透過率は低いため [45]、PEN のガスバリア性は十分高い事がわかる。ただし Xe に対するガスバリア性は実験により求める必要がある。

表 4.7　各種ポリマーの酸素・ガス透過性 [45]。

種類	厚さ [μ m]	単位: [cc/m^2/24h/atm]		
		酸素透過度		炭酸ガス透過度
		25 ℃	35 ℃	25 ℃
ナイロン 6	20	85	140	450
ナイロン 66	25	77	140	140
ナイロン 11	25	520	–	2,300
ナイロン 12	25	1,100	–	3,200
PET(Poly Ethylene Telephthalate)	25	43	–	430
ポリエステル (PETG)	50	50	–	150
ポリカーボネート	50	1,800	–	10,100
ポリスチレン	25	8,100	–	37,000
ポリエチレン (密度 0.92)	50	3,900	7,200	16,500
ポリエチレン (密度 0.955)	25	2,900	–	7,600

4.4　考察

吸収ピークが KamLAND-LS および Xe-LS の発光波長ピークに近い点にあることを除けば、PEN サンプル A は発光性バルーンフィルムとしての要求性能を満たしていることがわかった (表 4.8)。仮にこのまま PEN サンプル A 製バルーンを KamLAND 内部にインストールした場合、発光性バルーン内部での Xe-LS の発光がバルーンフィルムで吸収・再発光され、vertex resolution の低下を招くことが予想される。次章では、この吸収・再発光による問題を解決するために新たな液体シンチレータの開発の検討を行う。

表 4.8　PEN サンプル A に関する第 4 章実験結果のまとめ

評価項目	結果	コメント
α 線発光の確認	◯	
発光量測定	◯	^{214}Po の 7687 keV α 線に対して KamLAND-LS 比 72.1% の光量
発光波長測定	◯	430 nm
発光波形	◯	$\tau_{\mathrm{fast}} = 27.44 \pm 0.2534$ nsec、$\tau_{\mathrm{slow}} = 199.2 \pm 18.7$ nsec
PC 耐性	◯	
透過率	△	LS 発光波長ピークである 380 nm では悪いが、400 nm より長波長側では良い
溶着	◯	熱溶着でのリークはなく、強度も十分
放射性不純物	△	^{238}U が多いが、発光性バルーンでは問題となる ^{214}Bi はほぼ除去可能
ガスバリア性	◯?	酸素・炭酸ガスバリア性は高いが、Xe に対しては検証実験が必要

第 5 章

液体シンチレータの開発

5.1 研究動機および要求値

前章まで発光性バルーンフィルムの実験結果から、PEN(**P**oly**E**thylene **N**aphthalate) を素材として発光性バルーンを作成した場合、その透過率は現状の液体シンチレータ (KamLAND-LS、Xe-LS) の発光波長に対して不利になることがわかった。PEN は 400 nm よりも長波長側で透過率がよくなるため、現在よりも長い発光波長を持つ液体シンチレータの開発を目指す。ここで、450 nm よりも長波長側では PMT の量子効率が小さくなるため、400∼440 nm の領域に発光波長を持たせることを目標とする。

5.2 研究方法

液体シンチレータに波長変換剤である「bis-MSB」は PPO の発光波長付近 (370 nm) に吸収ピークを持ち、より長波長 (425 nm) の光を発することが知られている。このため、液体シンチレータに bis-MSB を添加したものは今回の研究動機に最適であると考えられるため、発光波長や発光量、透過率の変化を評価する。なお、「bis-MSB」を添加して液体シンチレータは、次世代型ニュートリノ検出器として開発が進められている「LENA(**L**ow **E**nergy **N**eutrino **A**stronomy)」でも導入が予定されている [46]。また、bis-MSB を KamLAND-LS に添加する実験は過去に行われており、見かけ上の発光量が良くなることがわかっている [47]。

本研究では発光性バルーン内の液体シンチレータ発光波長が、バルーンの透過率に影響されない波長領域にシフトさせることが目的であるので、特にデカン-LS(Xe を溶かしていない Xe-LS) に対して発光波長をシフトさせる研究を行った。過去の研究結果から、添加する bis-MSB は 0.01 g/L 程度で十分であることがわかっている [47]。

5.3 bis-MSB 添加デカン-LS の評価

5.3.1 発光波長特性の調査

実験方法

F-2000 型蛍光分光光度計 (日立) を用いて 0.008 g/L の bis-MSB を添加したデカン-LS の発光波長特性を調べた (4.3.3 節参考)。本測定では液体シンチレータの発光ピークを測定するため、石英セルを用いた。

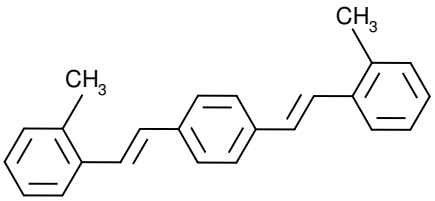

図 5.1　bis-MSB 構造式

実験結果

実験結果を図 5.2 に示す。

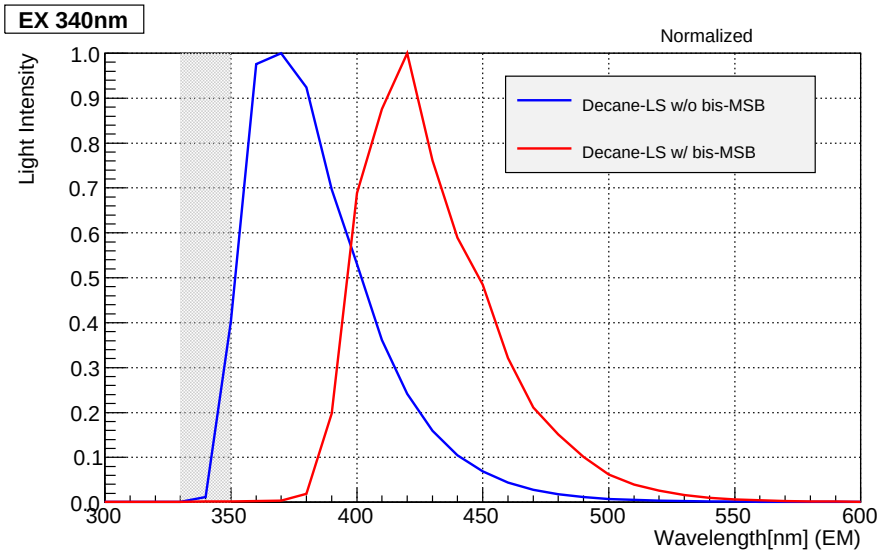

図 5.2　bis-MSB 添加によるデカン-LS の発光波長変化。波長 340 nm の励起光に対する発光ピークであり、それぞれ最大値で規格化してある。データ点は 10 nm 毎であり、灰色の波長領域は励起光を表す。青線は bis-MSB を添加していないデカン-LS、赤線は bis-MSB を 0.008 g/L 添加したデカン-LS の発光波長スペクトル。

考察とまとめ

波長変換剤である bis-MSB を添加したことにより、期待通り液体シンチレータの発光波長ピークが 425 nm に変化したことが確かめられた。

5.3.2　発光量の評価

実験方法

^{137}Cs による 477 keV の後方散乱イベントを利用した発光量測定を行い (付録 F 参照)、bis-MSB 添加によるデカン-LS の発光量の変化を調べた。液体シンチレータで後方散乱イベントによる反跳電子の発光を捉え、反跳後の γ 線を NaI シンチレータで同時計測を行う。NaI シンチレータで得られたエネルギースペクトルをガウシアンフィットし、中心値から $\pm 1\sigma$ 以内のイベントのみを選択することで、液体シンチレータ側はコンプトンエッジによる 477 keV のモノクロなエネルギーに対する発光量を得られる。概念図を図 5.3 に示した。

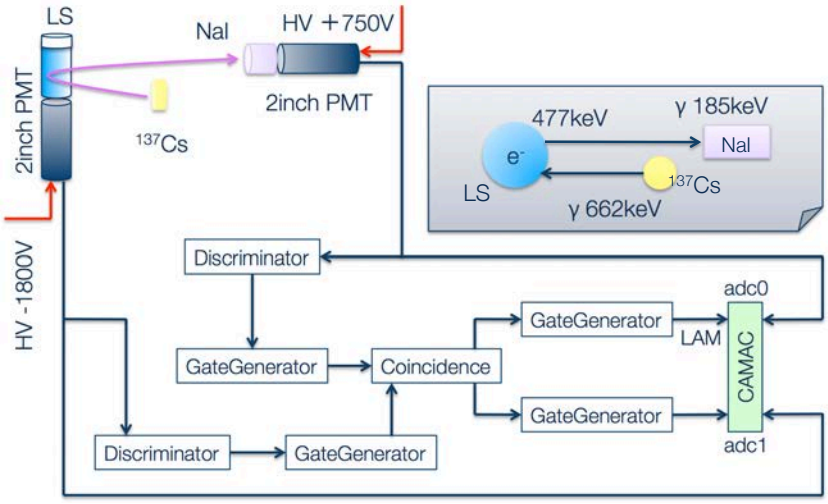

図 5.3　BackScatter 測定概念図

実験結果

後方散乱測定結果を図 5.4～ 図 5.9 に示す。

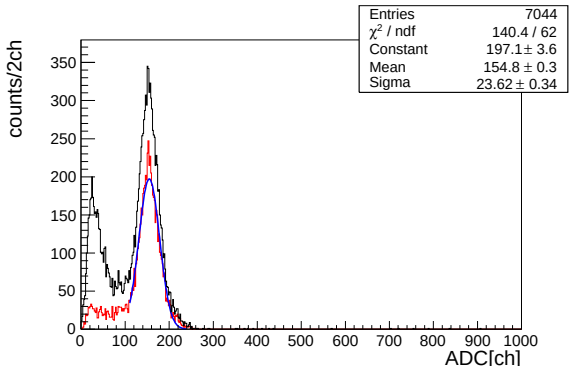

図 5.4　デカン-LS(bis-MSB 無添加) の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

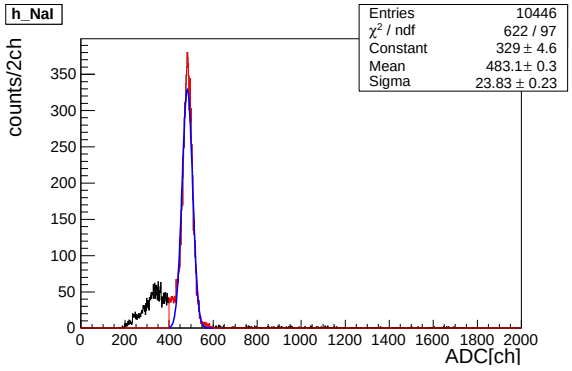

図 5.5　デカン-LS(bis-MSB 無添加) の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

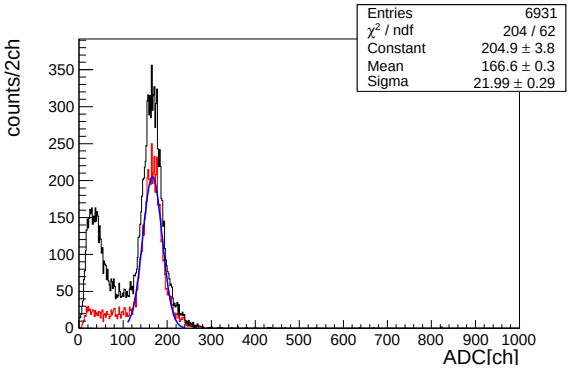

図 5.6　デカン-LS(bis-MSB を 0.010 g/120ml 添加) の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

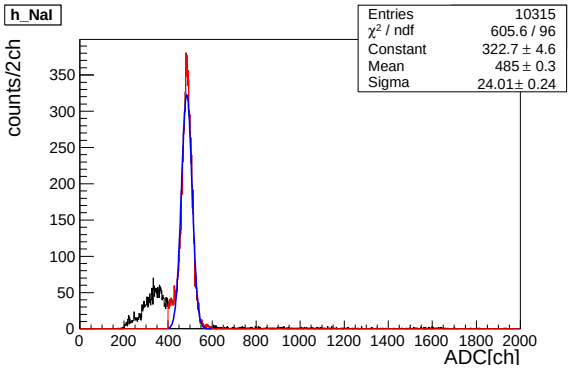

図 5.7　デカン-LS(bis-MSB を 0.010 g/120ml 添加) の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

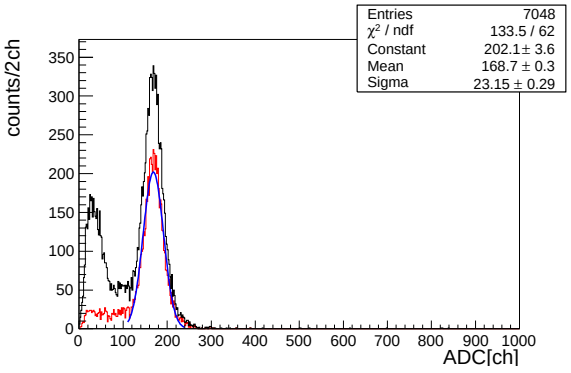

図 5.8　デカン-LS(bis-MSB を 0.024 g/120ml 添加) の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

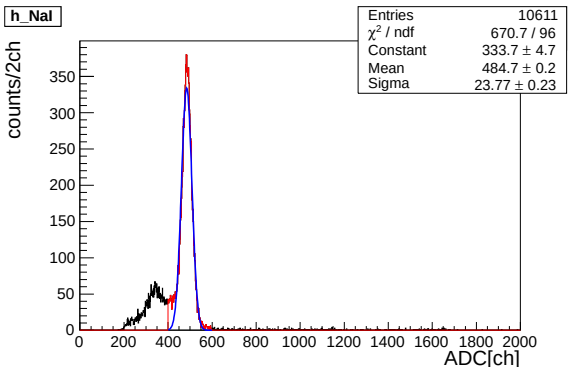

図 5.9　デカン-LS(bis-MSB を 0.024 g/120ml 添加) の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

以上の発光量測定の結果をまとめ、図 5.10 に発光量と bis-MSB の添加量依存性を示す。ここでの発光量 (縦軸) は、^{137}Cs の後方散乱イベントピークを Gaussian fit して得られた中心値であり、bis-MSB が無添加の場合の発光量を 1 と規格化してある。

考察とまとめ

わずかではあるが、bis-MSB を添加することにより発光量が増加していることがわかる。波長変換することにより、光量が減少するなどの問題は起こらないことが確認された。

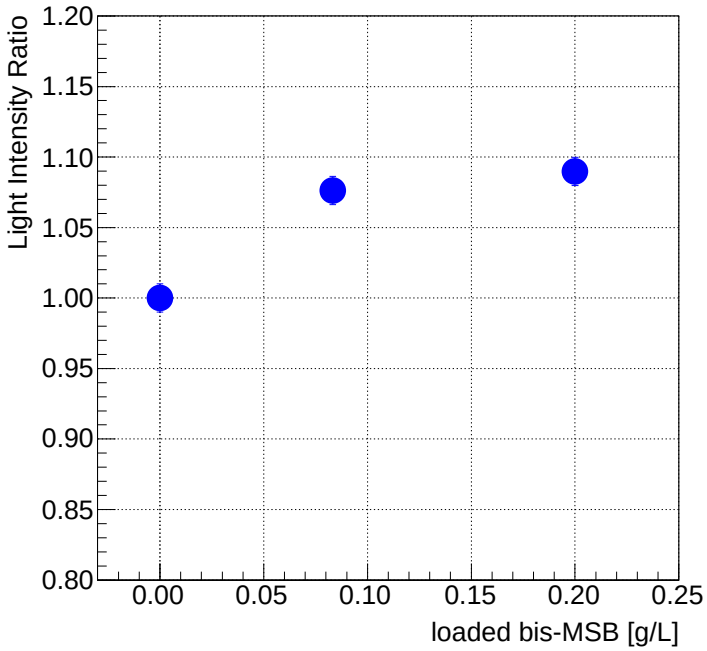

図 5.10　bis-MSB 添加によるデカン-LS の発光量変化。縦軸は bis-MSB を入れていない場合の発光量を 1 として規格化した。横軸は添加した bis-MSB 量である。

5.3.3　透過率の評価

実験方法

U-3900 ダブルビーム型分光光度計 (日立) を用いて液体シンチレータの透過率を測定した (付録 B 参照)。シクロヘキサンをベースラインにとり、9 cm 長での透過率を評価した。

実験結果

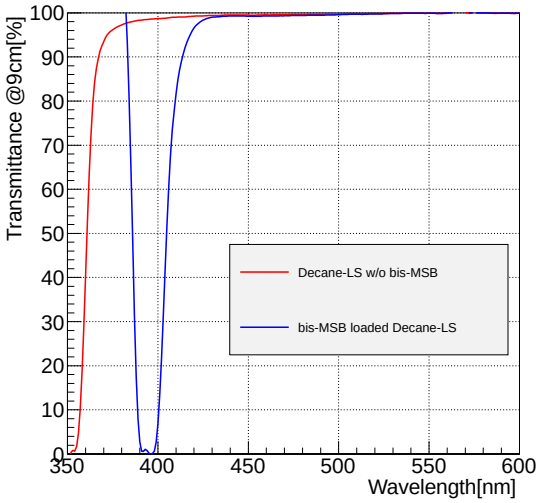

図 5.11　Xe-LS 透過率 (赤) と bis-MSB 添加したデカン-LS 透過率 (青)。どちらもシクロヘキサンをベースとした 9 cm 長の透過率である。

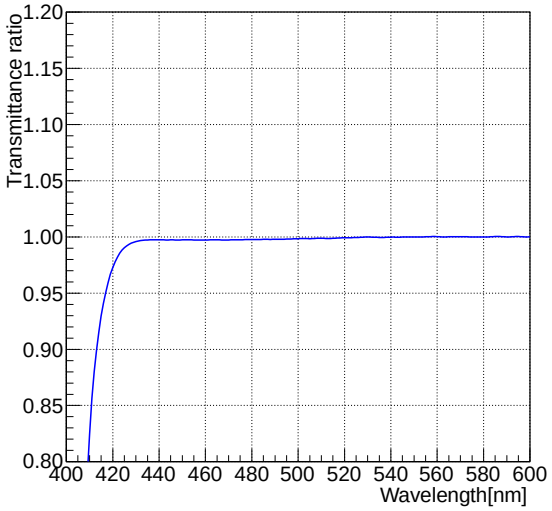

図 5.12　デカン-LS の透過率を 1 として規格化した場合の bis-MSB 添加デカン-LS の透過率

図 5.11 に透過率測定結果を示した。赤線は bis-MSB 無添加のデカン-LS であり、青線は bis-MSB を 0.008 g/L 添加したデカン-LS である。図 5.12 は bis-MSB の有無による透過率の変化度を表しており、縦軸は

$$\text{変化度} \equiv \frac{\text{bis-MSB 添加デカン-LS の透過率}}{\text{bis-MSB 無添加デカン-LS の透過率}} \tag{5.1}$$

である。

考察とまとめ

bis-MSB が吸収ピークを持つため 390 nm 付近での透過率は低くなっているが、発光波長ピークである 425 nm よりも長波長側では透過率が良い (図 5.11)。なお、bis-MSB を添加したデカン-LS の透過率は 390 nm より短波長側で値が 100% 以上に振り切っているが、分光光度計の 2 つのセル両方の透過度が 0 になり 0/0 で評価されることによるものである (付録 B 参照)。実際は 390 nm より短波長側では bis-MSB 添加デカン-LS の透過率は 0 である。

bis-MSB 添加の有無で透過率の比を取ると、図 5.12 のように、425 nm より長波長領域では bis-MSB 添加前と透過率が変わらないことが分かる。吸収ピークおよび発光ピークの位置がシフトしたのみで、液体シンチレータの透過率自体への影響は測定誤差内であることがわかる。

5.4　考察

本章では発光性バルーンの吸収ピークに影響されない波長領域に発光ピークを持つ液体シンチレータの開発についてまとめた。

Xe-LS に波長変換剤である bis-MSB を少量添加することにより発光波長を 425 nm へシフトさせることに成功し、発光量減少や透過率減少などの問題が起こらないことの確認ができた。これにより、bis-MSB を添加した液体シンチレータを用いることで、発光性バルーンを導入する際の問題点を解決することが可能となった。

第 6 章

シミュレーション

本研究内容を導入した際に得られる $0\nu\beta\beta$ 探索の実験感度を、簡単なシミュレーションによって予測し、導入の意義について議論する。

6.1 シミュレーションによるバックグラウンド数予測

本研究で取り扱った PEN サンプル A 製バルーンおよび bis-MSB 添加液体シンチレータを導入した場合に、KamLAND-Zen 実験で見られる $0\nu\beta\beta$ に対するバックグラウンドについてシミュレーション予測を行い、次節では得られたバックグラウンドを元に到達感度予測を行う。

シュミレーション手順は以下の通りである。

1. GEANT4 による 1,000,000 個のランダムイベントの作成
2. ^{136}Xe 0ν エネルギー領域の決定
3. ^{136}Xe 0ν エネルギー領域のバックグラウンドイベント数を計算
4. Fiducial Volume(FV) の最適化
5. FV 内に入るバックグラウンド数および ^{136}Xe 0ν 信号の計算
6. 質量上限値の計算

6.1.1 シミュレーション条件

GEANT4 で再現された KamLAND-Zen 実験のイベントを元に、発光性バルーン導入による寄与を加えた。

発光性バルーン

^{214}Bi-^{214}Po の遅延同時計測による Tag 効率にその寄与を見積もった。

まずバルーン膜中で後発信号である ^{214}Po の α 線は全てストップすると仮定した上で、発光性バルーンにおける発光量が KamLAND のスレッショルドを超える確率を考える (図 6.1)。液体シンチレータの発光量の方が大きいため、バルーンを透過し液体シンチレータ側で後発信号が発光した方がスレッショルドを超える確率は高くなる。したがってこの仮定は conservative なものである。PEN サンプル A での ^{214}Po に対する発光量は本研究により 433 keV と求められているが、KamLAND のスレッショルドは約

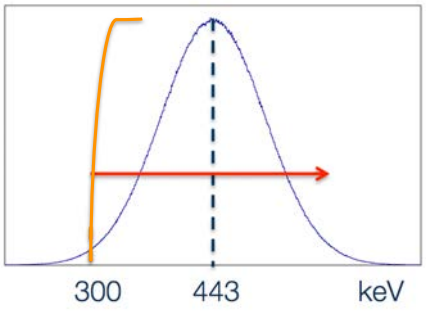

図 6.1　PEN サンプル A での ^{214}Po に対する発光量 (443 keV) と KamLAND スレッショルド (300 keV)。

300 keV、エネルギー分解能は $6.6\%/\sqrt{E\ (\mathrm{MeV})}$ であるため [35]、

$$\frac{6.6\%}{\sqrt{0.443(\mathrm{MeV})}} = 10.0\%\ (@443\ \mathrm{keV}) \tag{6.1}$$

であるから、conservative に見積もっておよそ $3\sigma = 99.7\%$ の確率で発光を確認でき、遅延同時計測によって ^{214}Bi が除去される。

またバルーン素材中に含まれる放射性不純物については本研究結果を適用し、表 4.6 の数値を用いた。

波長変換剤添加液体シンチレータ

bis-MSB 添加ついては、発光量の増加による効果を集光率 n に押し込めた (式 6.2)。

$$n = \int N_{\mathrm{emit}}(\lambda) \times T(\lambda) \times Q(\lambda)\ d\lambda \tag{6.2}$$

ただし、$N_{\mathrm{emit}}(\lambda)$ は液体シンチレータの発光量、$T(\lambda)$ は透過率、$Q(\lambda)$ は PMT の量子効率であり、全て波長 λ の関数となっている。

その他パラメータ

計算の簡単のため、他のパラメータを表 6.1 の通りとした。

表 6.1　シミュレーションとして設定したパラメータ。ニュートリノは有効質量 150 meV を仮定している。

Xe 量	390 kg
ミニバルーン半径	1.58 m
ミニバルーンフィルムの厚み	25 μm
エネルギー分解能	$6.6\%\ /\ \sqrt{E\ [\mathrm{MeV}]}$
位置分解能	$15\ \mathrm{cm}\ /\ \sqrt{E\ [\mathrm{MeV}]}$
^{136}Xe 2ν 半減期 $T^{2\nu}_{1/2}$	2.30×10^{21} yr　(KamLAND-Zen 結果 [31] より)
^{136}Xe 0ν 半減期 $T^{0\nu}_{1/2}$	$4.55^{+0.68}_{-0.56} \times 10^{26}$ yr　(QRPA モデルを仮定 [48])
ニュートリノ有効質量	150 meV

本シュミレーションで考慮するバックグラウンドは、^{208}Tl、^{214}Bi、^{10}C、^{11}Be、^{8}B solar ν、^{136}Xe 2ν である。また、新たにバルーンを導入した際は $^{110\mathrm{m}}$Ag の混入を防ぐことができるものとし、今回はバックグラウンドからは除いた。^{214}Bi は上記の通り 99.7% が除去できるものとし、また ^{10}C は MoGURA

導入による 90% の除去効率を考慮した [36]。GEANT4 によって作成した 1,000,000 個のイベントに対して、表 6.1 のパラメータを考慮してエネルギースペクトルおよびミニバルーン表面からの距離の情報を作成した。ミニバルーン表面からの距離情報は、FV 決定のために用いた。

また、次期計画である 700 kg フェーズにおけるシミュレーションでは簡単のため、バルーンを涙型ではなく半径 2 m の一様球として計算し、Xe 量は 700 kg としている。他パラメータは表 6.1 と同じである。

6.1.2　$0\nu\beta\beta$ 信号エネルギー領域の決定

^{136}Xe 0ν 信号のエネルギー領域を、作成したランダムイベントのエネルギースペクトルをフィットすることにより求めた。図 6.2 にフィッティングの様子を示した。フィットレンジは 2.3 ∼ 2.8 MeV であ

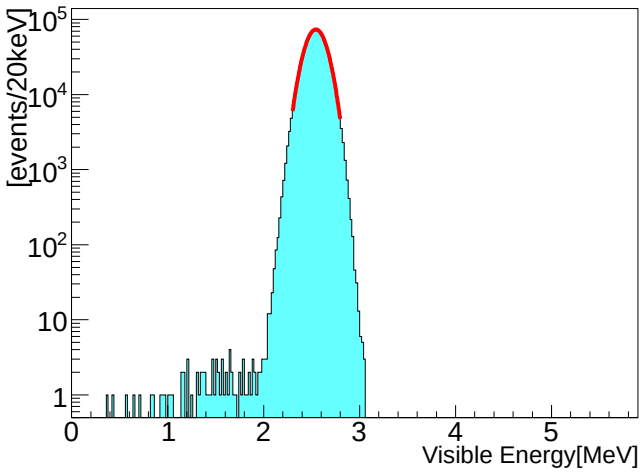

図 6.2　^{136}Xe 0ν エネルギースペクトルとガウシアンフィット。

る。低エネルギー側には ^{136}Xe 2ν 信号の染み込みがあるため、ピークを中心に $-1\sigma \sim 2\sigma$ の範囲としている。2 MeV 以下に ^{136}Xe 0ν 信号が見られるが、これはミニバルーンの外に出て行ったイベントについてエネルギーを再構成する際に、ミニバルーン膜中で落としたエネルギーを考慮していないためである。

6.1.3　FV の最適化

FV は、式 6.3 で定義される **F**igure **O**f **M**erit (FOM) を求め、FOM が最大となるときの体積として求める。

$$\mathrm{FOM} \equiv \frac{S}{\sqrt{B+S}} \tag{6.3}$$

ただし、S は ^{136}Xe 0ν 信号数、B は予測されたバックグラウンド数。

以上のシミュレーション条件の下、発光性バルーンインストール時に予測されるバックグラウンド数および FOM を図 6.3、6.4 に示す。これより発光性バルーンを導入することで FV を制限する要因である ^{214}Bi バックグラウンドを大幅除去でき、FV を 100% 選択できることがわかった。

さらに次期計画である 700 kg フェーズでは図 6.5、6.6 のようになり、FV100% 選択が可能なため、増量した Xe を全て活用できる。

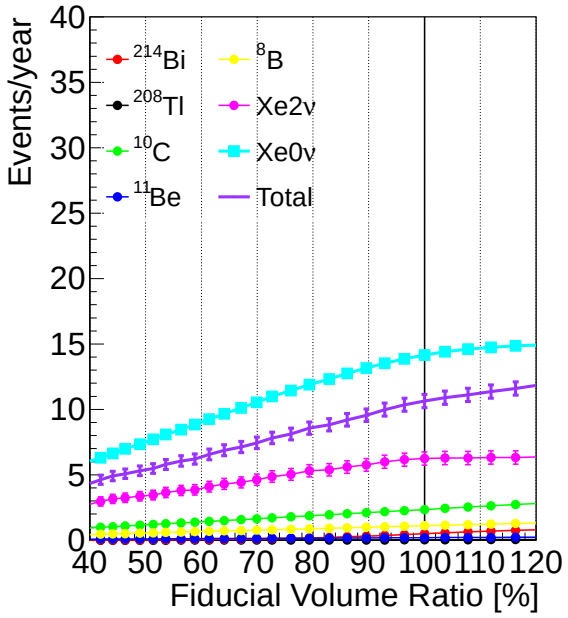

図 6.3　現第 2 フェーズに発光性バルーンを導入した場合の各バックグラウンドレート。

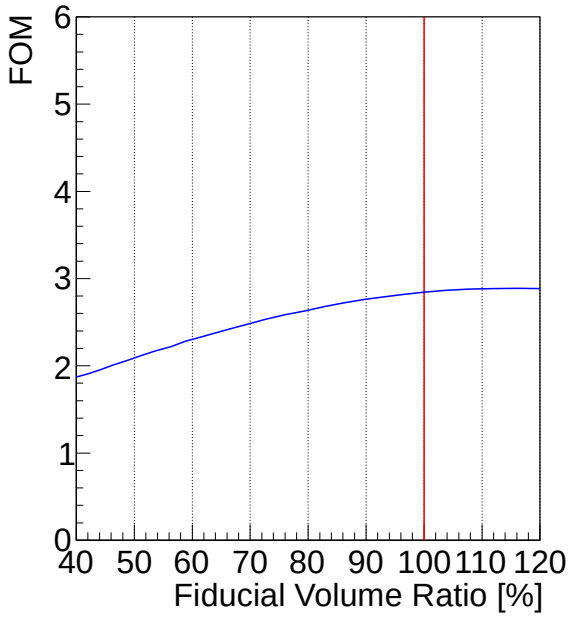

図 6.4　現第 2 フェーズに発光性バルーンを導入した場合の FOM。

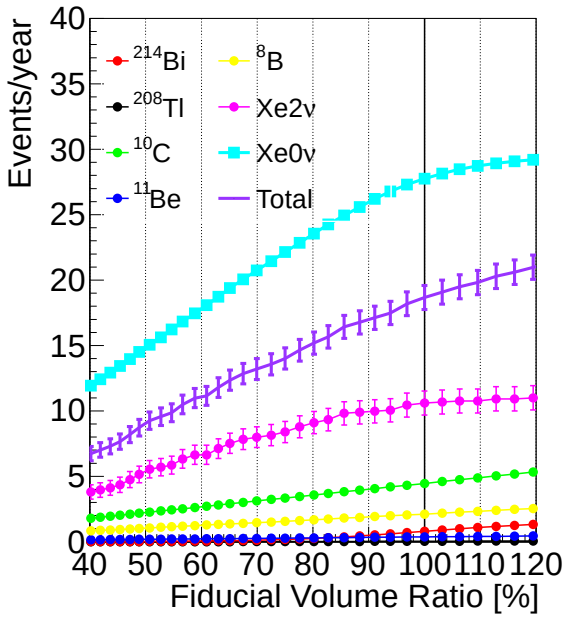

図 6.5　Xe-700 kg フェーズに発光性バルーンを導入した場合の各バックグラウンドレート。

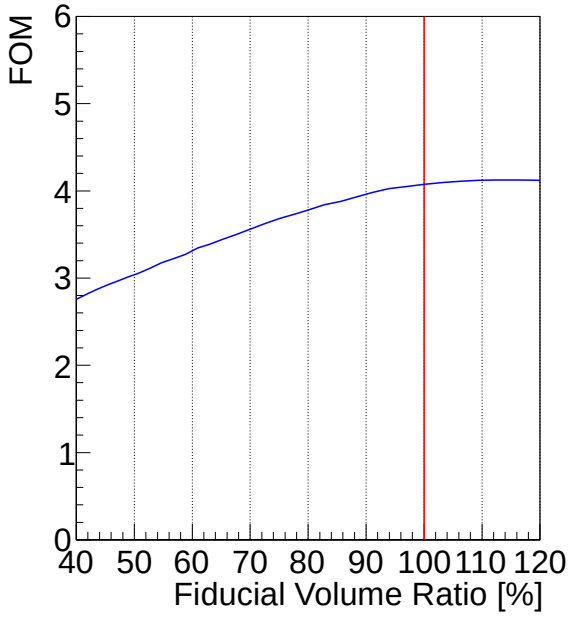

図 6.6　Xe-700 kg フェーズに発光性バルーンを導入した場合の FOM。

6.1.4　シミュレーションで予測されたバックグラウンド数と ^{136}Xe 0ν 信号数

以上から求められる、FV100% 選択時の ^{136}Xe 0ν エネルギー領域にあるバックグラウンド数は表 6.2 に示す。^{214}Bi がほぼ除去され、全バックグラウンド数に対する ^{136}Xe 0ν 信号数が増えているのが分かる。本シュミレーションでの予測では、発光性バルーン導入後に考慮すべきものは ^{136}Xe 2ν であり、エネルギー分解能を向上させるような検出器アップグレードが期待される。

表 6.2　現第 2 フェーズに発光性バルーンを導入した際に 1 年間の観測で予想されるイベント数。

^{208}Tl	^{214}Bi	^{10}C	^{11}Be	^{8}B solar ν	^{136}Xe 2ν	^{136}Xe 0ν
3.05×10^{-2}	4.35×10^{-1}	2.26	1.90×10^{-1}	1.07	6.17	13.9
$\pm 2.50 \times 10^{-3}$	$\pm 1.64 \times 10^{-3}$	$\pm 1.07 \times 10^{-3}$	$\pm 6.75 \times 10^{-3}$	$\pm 2.39 \times 10^{-2}$	$\pm 5.00 \times 10^{-1}$	$\pm 1.60 \times 10^{-2}$

さらに次期計画である Xe-700 kg フェーズでは表 6.3 のようになる。体積増加に伴うバックグラウンドが増加したが、Xe 量を増やしたことによって ^{136}Xe 0ν 信号数も増加した。

表 6.3　Xe-700 kg フェーズに発光性バルーンを導入した際に 1 年間の観測で予想されるイベント数。

^{208}Tl	^{214}Bi	^{10}C	^{11}Be	^{8}B solar ν	^{136}Xe 2ν	^{136}Xe 0ν
3.36×10^{-2}	7.01×10^{-1}	4.32	3.63×10^{-1}	2.04	10.4	27.3
$\pm 3.33 \times 10^{-3}$	$\pm 2.64 \times 10^{-3}$	$\pm 1.47 \times 10^{-3}$	$\pm 9.32 \times 10^{-3}$	$\pm 3.30 \times 10^{-2}$	$\pm 9.09 \times 10^{-1}$	$\pm 3.13 \times 10^{-2}$

6.2　質量上限値の予測

前節で議論したバックグラウンド数および FV を元に実験感度の予測を行う。

6.2.1　90%C.L. 領域の決定

前節で得られた 1 年間で期待される ^{136}Xe 0ν 信号数 ($N_{\rm signal}$) およびバックグラウンド数 ($N_{\rm BG}$) の和である $N_{\rm tot}$ を平均とした、イベント数に関する正規分布関数 $f(N)$ を作成した。

$$f(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(N - N_{\rm tot})^2}{2\sigma^2}\right) \tag{6.4}$$

正規分布関数の左側に面積割合 10% の領域を図 6.7 の通り $N_{\rm left}$ によって設定した。ランダムに抽出したサンプルの持つイベント数が $N_{\rm left}$ 以下だった場合、そのサンプルが $N_{\rm tot}$ の作る正規分布に属するという仮定を棄却し、$N_{\rm tot}$ 以下の作る正規分布に属するものとする (片側検定)。ここで使用するランダムイベントは、前節と同様に QRPA モデルにて 150 meV のニュートリノ有効質量を仮定して得られたものである。^{136}Xe 0ν がニュートリノ有効質量の関数であることを利用し (式 1.67)、ニュートリノ有効質量のつくる正規分布についても $N_{\rm left}$ によって棄却領域の設定を行った (図 6.8[*1])。同様の試行を 100,000 回のランダムデータに対して行い、その平均値を求める事で 1 年間の観測での質量上限値を計算した。

[*1] 例えば i 番目に抽出されたデータが (N_i, m_i) の場合、^{136}Xe 0ν 信号が N_i [Events/year] 以下であったとすると、ニュートリノ有効質量 m_i [meV] 以上の領域においては N_i<$N_{\rm left}$ であり、90%C.L. の領域から外れるため、「この抽出データ

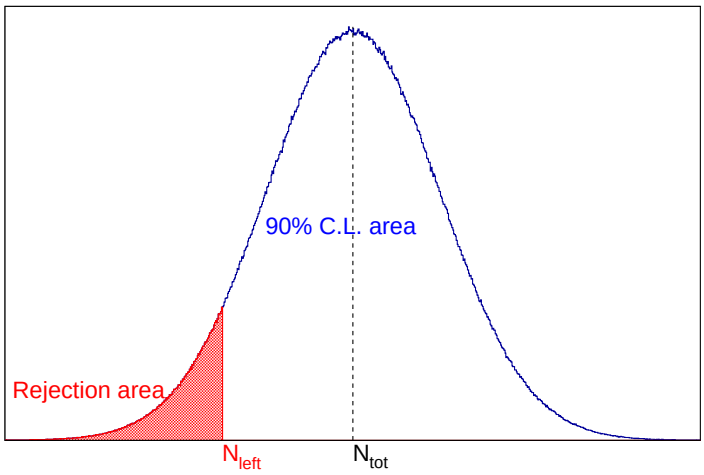

図 6.7　正規分布関数と 90%C.L. 領域。

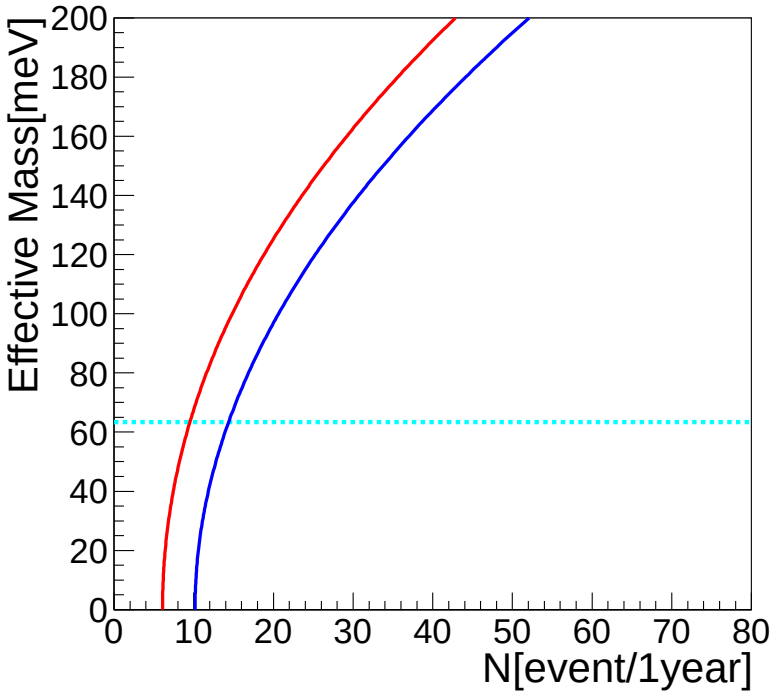

図 6.8　90%C.L. Confidence belt と質量上限値計算方法。赤線は $N_{\rm left}$、青線は $N_{\rm tot}(= N_{\rm signal} + N_{\rm BG})$。赤線と水色点線との交点は (9 event/year, 64 meV)。

6.2.2　実験感度予測

発光性バルーン導入時に予測される質量上限値を図 6.9 の黒線に示す。赤色の塗りつぶし領域は原子核モデルである QRPA における核行列要素の理論的不定性によるものである。約 1.7 年間の継続運転に

は、あるニュートリノ有効質量 m_i [meV] 以上が作る正規分布に属する」と仮定した場合、その仮定が棄却される事になる。よって、「この抽出データが ^{136}Xe 0ν 信号を含み、あるニュートリノ有効質量が作る正規分布に属する」という仮定が採択されるにはニュートリノ有効質量は m_i [meV] 未満でなければならない。

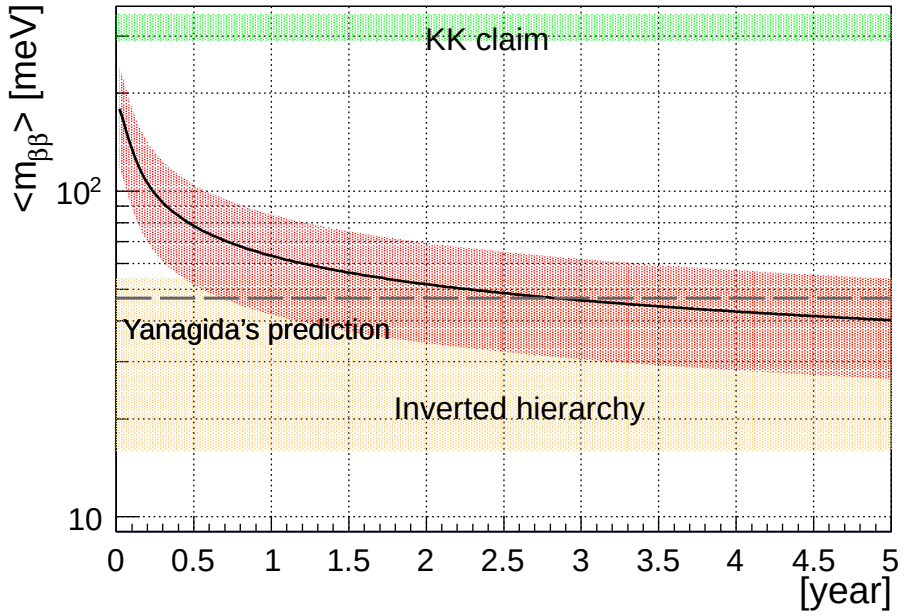

図 6.9　現第 2 フェーズに発光性バルーンを導入した場合に予測される質量上限値。

よって逆階層構造 (オレンジ色の塗りつぶし領域) まで切り込む事が可能であり、2.7 年では柳田予想 (灰色点線) の検証を可能にする。また、5 年間の稼働によっておよそ 40 meV の質量上限値を得る。

さらに次期計画である 700 kg フェーズでは図 6.10 のようになる。実験開始からわずか 4 ヶ月で逆階層構造に切り込み、5 ヶ月で柳田予想の検証が可能になる。5 年間の継続運転によるニュートリノ有効質量到達感度は約 23 meV となった。

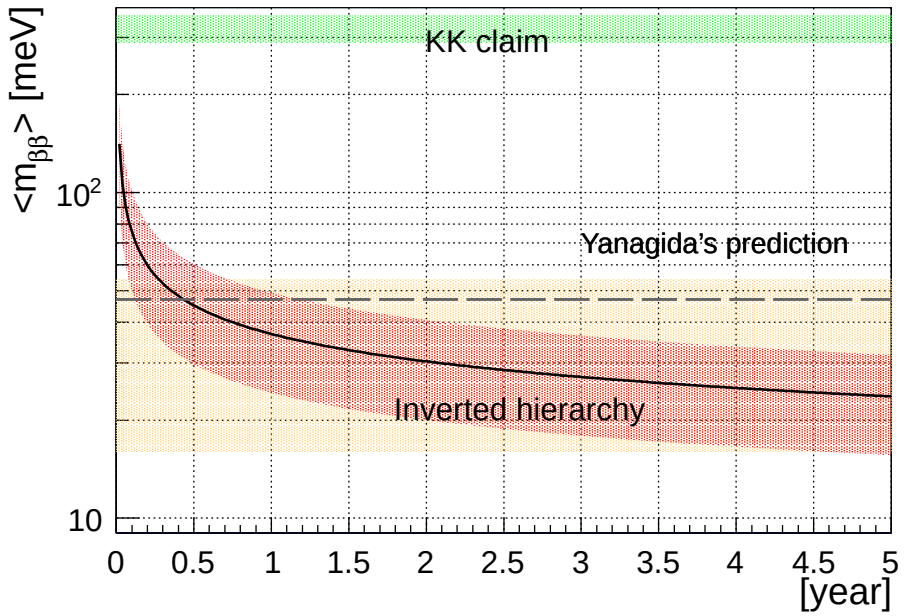

図 6.10　Xe-700 kg フェーズに発光性バルーンを導入した場合に予測される質量上限値。

また、現状の KamLAND-Zen 実験 2nd フェーズの環境においても上記と同様のシミュレーションを行うことにより、実験感度の比較を行った (図 6.11)。

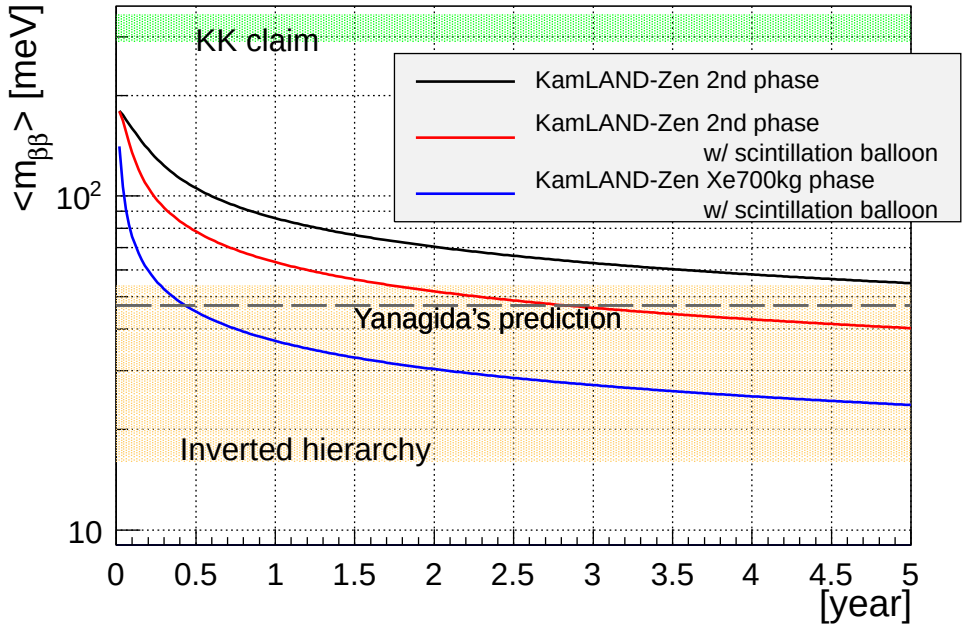

図 6.11　KamLAND-Zen 実験第 2 フェーズでの質量上限値予測 (黒線) と第 2 フェーズに発光性バルーンを導入した場合に予測される質量上限値 (赤線)、Xe-700 kg フェーズに発光性バルーンを導入した場合の質量上限値予測 (青線) の比較。

6.3　考察とまとめ

発光性バルーン導入によって ^{214}Bi が除去され、KamLAND-Zen 実験の感度が大幅に向上することが明らかになった。現行第 2 フェーズでの 5 年間での到達感度はニュートリノ有効質量約 40 meV、Xe-700 kg フェーズにおいては約 23 meV である。

第 7 章

結論と今後の課題

本研究では PEN サンプル A で作る発光性バルーンの原理的な可能性を示した。この発光性バルーンによって KamLAND-Zen 実験において主要なバックグラウンドである ^{214}Bi を大幅除去することができる。また、PEN サンプル A はその透過率に難点があったが、bis-MSB を液体シンチレータに添加することで問題を解決できることを提案した。

PEN サンプル A について、本研究では Xe ガスバリア性について実験することができなかったために文献でのおおよその検討を行ったが、今後は実験によって確かめる必要がある。また、**P**oly**E**thylene**N**aphthalate をベースとした別の製品であっても発光性バルーン素材として用いることができる可能性があり、PEN サンプル A 以上に高透過率および低含有放射性不純物量の素材があればなお良い。

また、発光性バルーン導入時には液体シンチレータに波長変換剤である bis-MSB を添加する必要があるが、放射性不純物含有量の測定及び純化方法についても今後の課題である。

発光性バルーン導入によって得られる将来的なニュートリノ有効質量上限値は 5 年間でおよそ 40 meV となっており、現行の KamLAD-Zen 実験 2nd フェーズでは 5 年間の継続運転でも到達し得ない逆階層構造に約 1.7 年で切り込むことが可能になることがわかった。さらに次期計画である Xe-700 kg フェーズに導入した場合、逆階層構造にはわずか 4 ヶ月で切り込み、5 年間では約 23 meV のニュートリノ有効質量まで感度到達することを明らかにした。

付録 A

シンチレータ

蛍光 (シンチレーション光) とは蛍光物質分子のスピン 1 重項からの落ち込みの際に発せられた光のことを指す (3 重項からの落ち込みの場合は燐光と呼ばれる)。

固体シンチレータ

シンチレータは大きく無機シンチレータと有機シンチレータの２つに分けられる。例えば代表的な無機固体シンチレータとして NaI シンチレータが挙げられる。原子番号が大きいため γ 線に対しての感度がよく、また後述する有機シンチレータと比べて時定数は長いが、発光量は比較的大きい (表 A.1、表 A.2)。

有機固体シンチレータ (プラスチックシンチレータ) は、ポリスチレンなどのプラスチックに有機蛍光物質を溶かしこんだシンチレータであり、加工性に富み、放射線計測などに用いられる。

近年、有機蛍光物質を溶かし込まずとも PolyEthylen Naphthalate(PEN) や PolyEthylen Terephtalate(PET) などがシンチレーション光を出すことが明らかになっている [41] [42]。本論文では、この PEN に関して議論されている。

表 A.1　代表的な有機シンチレータの性能 [49]。

種類	密度 [g/cm^3]	屈折率	減衰定数 τ[nsec]	最大発光波長 $\lambda_{\max}$[nm]	相対感度
アントラセン	1.25	1.62	32	447	100
スチルベン	1.16	1.62	6	410	70
プラスチック	1.03∼1.05	1.58	2±0.5	430	60±5
液体	0.86∼1.05	∼1.5	3±0.5	∼425	70±10

表 A.2　代表的な無機シンチレータの特性 [49]。

種類	NaI(TI)	CsI(TI)	ZnS(Ag)	BGO	YAP(Ce)	LSO(Ce)	GSO(Ce)	LiI(Eu)
Z_{eff}	53	54	30	83	39	71	64	52
ρ[g/cm^3]	3.67	4.51	4.09	7.13	5.55	7.35	7.13	4.08
屈折率	1.85	1.79	2.36	2.15	1.93	1.82	1.85	4.08
τ[nsec]	230	1000	70	300	28	11, 36	30∼60	1400
$\lambda_{\max}$ [nm]	415	565	450	480	347	420	440	470
相対感度	100	45	130	12	40	76	20∼25	30∼35

液体シンチレータ

トルエンやキシレンなどの有機溶媒にジフェニルオキサゾール (PPO) などの有機蛍光物質や、bis-MSB などの波長変換剤を溶かしたものである (KamLAND で用いられている液体シンチレータの成分については本文第 2 章を参照)。また、液体シンチレータの発光原理については

1. 溶媒分子が放射線によって励起
2. 溶質 (蛍光物質) 分子へ溶媒分子からエネルギー移行
3. 溶質分子がシンチレーション発光

と考えられている [50] [51]。

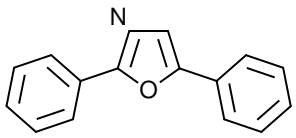

図 A.1　PPO 化学構造式

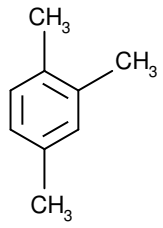

図 A.2　PC(プソイドクメン) 化学構造式

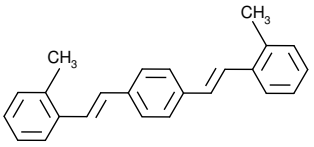

図 A.3　bis-MSB 化学構造式

クエンチング

シンチレータの発光量を測定した際、本来の発光量よりも小さな値が得られることがある。この消光現象をクエンチングと呼ぶが、大別すると以下の種類がある [50]。

- 化学クエンチング
- 色クエンチング
- 酸素クエンチング
- 濃度クエンチング
- 電離クエンチング

「電離クエンチング」は α 線では顕著であり、KamLAND-LS の数 MeV の α 線に対するクエンチングファクターは約 1/13 となっている [35]。また KamLAND-LS および Xe-LS において、特に液体シンチレータ作成時に溶解した酸素による酸素クエンチングが起こりうる。酸素クエンチングを防ぐには、液体シンチレータ体積の約 15 倍の窒素でパージを行うとクエンチングによる影響が測定誤差内に抑えられるとの結果があるため [28]、本研究で扱う液体シンチレータは全て必要量の窒素パージを行っている。

付録 B

透過率測定

本研究において透過率測定を行った実験装置についてまとめる。

ダブルビーム型分光光度計

測定装置

液体シンチレータの透過率を測定するため、日立ハイテク社のダブルビーム型分光光度計 U-3900 (図 4.31) を用いた。シングルビーム型の測定装置と比べ、光源の不安定性などの時間変動ノイズを少なくすることができ、測定精度が高い (0.1%)。リファレンス用石英セル、サンプル用石英セルに同時にビームを当てて透過率測定を行うことで、セルに起因する誤差を小さくしている。

$$10\text{ cm 長相対透過率 [\%]} \equiv \frac{\text{サンプル側 10 cm セルを透過した光強度}}{\text{リファレンス側 10 cm セルを透過した光強度}} \tag{B.1}$$

測定精度の評価

KamLAND グループにおける液体シンチレータの透過率測定においては、シクロヘキサンをベースラインに設定した絶対透過率換算での透過率測定を行っている。1 cm 長セルおよび 10 cm 長セルを用意し、両方のセルにサンプルを満たし測定をすることで、ベースラインに対する 9 cm 長での絶対透過率を得る。シクロヘキサンはこの U-3900 分光光度計の測定感度波長内に吸収ピークを持たず透過率が非常に良いことから、空気 (空セル) をベースラインに取るよりも精度よく測定が可能となる。

$$9\text{ cm 長絶対透過率 [\%]} \equiv \frac{10\text{ cm 長セルを透過した光強度}}{1\text{ cm 長セルを透過した光強度}} \tag{B.2}$$

測定精度に大きく影響するものは、セル洗浄の際のほこり等の汚れの付着による光透過度の低下である。これはセルの洗浄を同じプロセスで行うことと、洗浄の慣れによりかなりの高い精度で測定を行うことが可能となった。測定時には、セルの洗浄〜データ取得までの流れを同条件で 3 回繰り返し、そのデータの平均値を用いることで 1 回毎の洗浄度合いによる誤差を小さくした。具体的には先述の分光光度計の精度と含めて、$\pm 0.5\%$ の精度を実現する事ができた。

なお、ほとんど光を通さないほどの吸収ピークをもつ試料に対して上記の測定を行う際、その波長領域では 1 cm セルおよび 10 cm セル両方を透過した光強度が 0 に近くなり、式 B.2 から測定値は $\sim 0/\sim 0$ となり、正しい値は得られない。この場合、シクロヘキサン等をリファレンスとして式 B.1 のように相対透過率を測定すれば、吸収ピーク付近における透過率が 0% になっていることが容易に確かめられる。

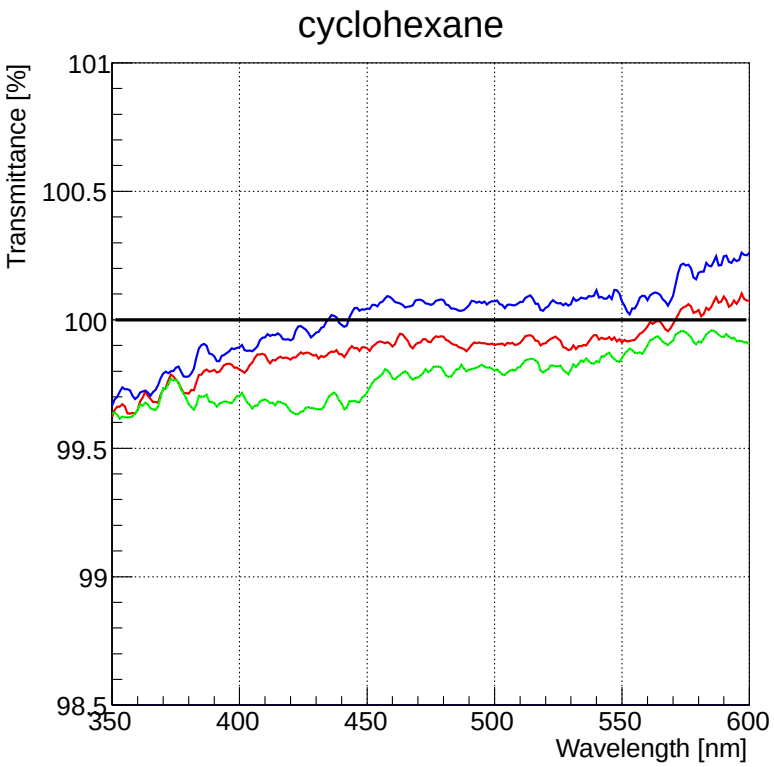

図 B.1　シクロヘキサンの透過率測定データ：3 回とも同一条件で測定したものである。

透過率換算

本測定で測定される液体シンチレータの透過率は 9 cm 長のものであるが、実際の KamLAND ではミニバルーン半径が約 1.54 m、バルーン半径が約 6 m である。この経路長 (光が通る路の長さ) が異なる場合の透過率を計算によって求める。ここで、吸収係数 α、経路長 x を用いて、透過率 T は Beer-Lambert の法則から

$$T = e^{-\alpha x} \tag{B.3}$$

と表される。吸収係数は物質によって特定の値を持つため、液体シンチレータが一様均一であれば、式 B.3 から異なる長さでの透過率に換算できる。β [cm] での透過率は

$$T_{(\beta\text{[cm]}\ \text{での透過率換算値})} = T_{(9\text{[cm]}\ \text{での透過率測定値})}^{\frac{\beta\text{[cm]}}{9\text{[cm]}}} \tag{B.4}$$

となる。同様にフィルムの透過率も測定値よりも薄いサンプルの透過率を計算によって導くことが可能である。

なお計算すれば自明だが、測定値が小さい場合は計算値での誤差幅は非常に大きくなる。物質の吸収ピークはその分子構造に起因するものが多く、透過率測定値が 0% に近いような吸収ピークをもつ波長領域では、経路長を変えて計算すると透過率が改善するように見えるが、実際はほぼ変わらず 0% の透過率のままである。

付録 C

含有放射性不純物

表 C.1 にペレット状でのナイロンに含まれる放射性不純物についてまとめた (一部数値と会社名の公表の許可を得ていないため、会社名は伏せてある)。実際に KamLAND-Zen 実験で使用されているナイロンは会社 A のものである。表中に記載されている「filler」とはナイロン表面を滑りやすくするものであり、市販品としては通常 filler 有りの商品が売られている。

表 C.1　ペレット状でのナイロンの含有放射線不純物。^{40}K は自然存在比 0.0117% から求めた [52]。実際に KamLAND-Zen 実験で用いられているナイロンは A 社のものである。

ペレット会社名	^{238}U [10^{-12}g/g]	^{232}Th [10^{-12}g/g]	K(^{40}K) [10^{-12}g/g]
会社 A(台湾)	0.6	1.1	1.3×10^4 (1.5)
会社 B(日本)	< 0.1	< 0.1	2.5×10^3 (2.5)
会社 C(ドイツ)	0.8	< 0.1	6.0×10^3 (0.29)
会社 D(オランダ)	1.0	15.0	1.5×10^3 (0.18)
会社 E(日本、filler 有)	6.8×10^3	3.2×10^4	2.6×10^6 (304)
会社 E(日本、filler 無)	86	5.0×10^2	$< 1.0 \times 10^5$ (12)
会社 F(日本、filler 有)	1.2×10^2	2.7×10^2	$< 1.0 \times 10^5$ (12)
会社 F(日本、filler 無)	< 5	< 5	$< 1.0 \times 10^5$ (12)

また、表 C.2 にはフィルム状へ加工した後で測定した含有放射性不純物量の一覧を載せた。表 C.1 と比べ、フィルム状への加工作業時に放射性不純物量が増えているのが分かる。

表 C.2　フィルム状でのナイロンの含有放射線不純物。^{40}K は自然存在比 0.0117% から求めた [52]。

フィルム会社 / ペレット会社	^{238}U [10^{-12}g/g]	^{232}Th [10^{-12}g/g]	K(^{40}K) [10^{-12}g/g]
東洋紡 / 会社 A(洗浄前)	9	11	$< 1.0 \times 10^5$ (12)
東洋紡 / 会社 A(洗浄後)	2	3	2.0×10^4 (2.3)
東洋紡 / 会社 B(洗浄前)	20	28	$< 1.0 \times 10^5$ (12)
東洋紡製品	24	420	$< 1.0 \times 10^5$ (12)
会社 G 製品	150	590	1.2×10^6 (140)

付録 D

^{238}U、^{232}Th 崩壊系列

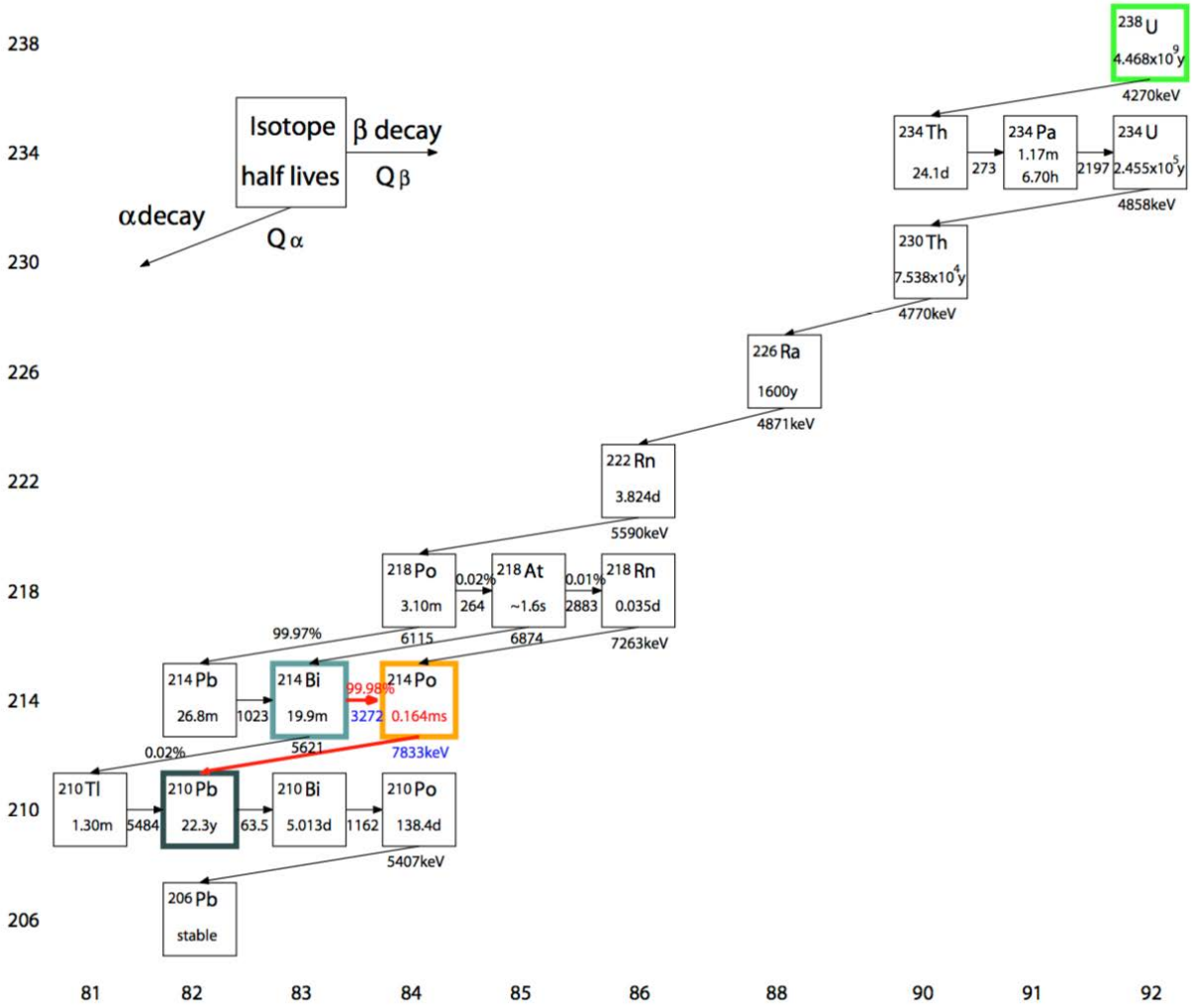

図 D.1　^{238}U 崩壊系列

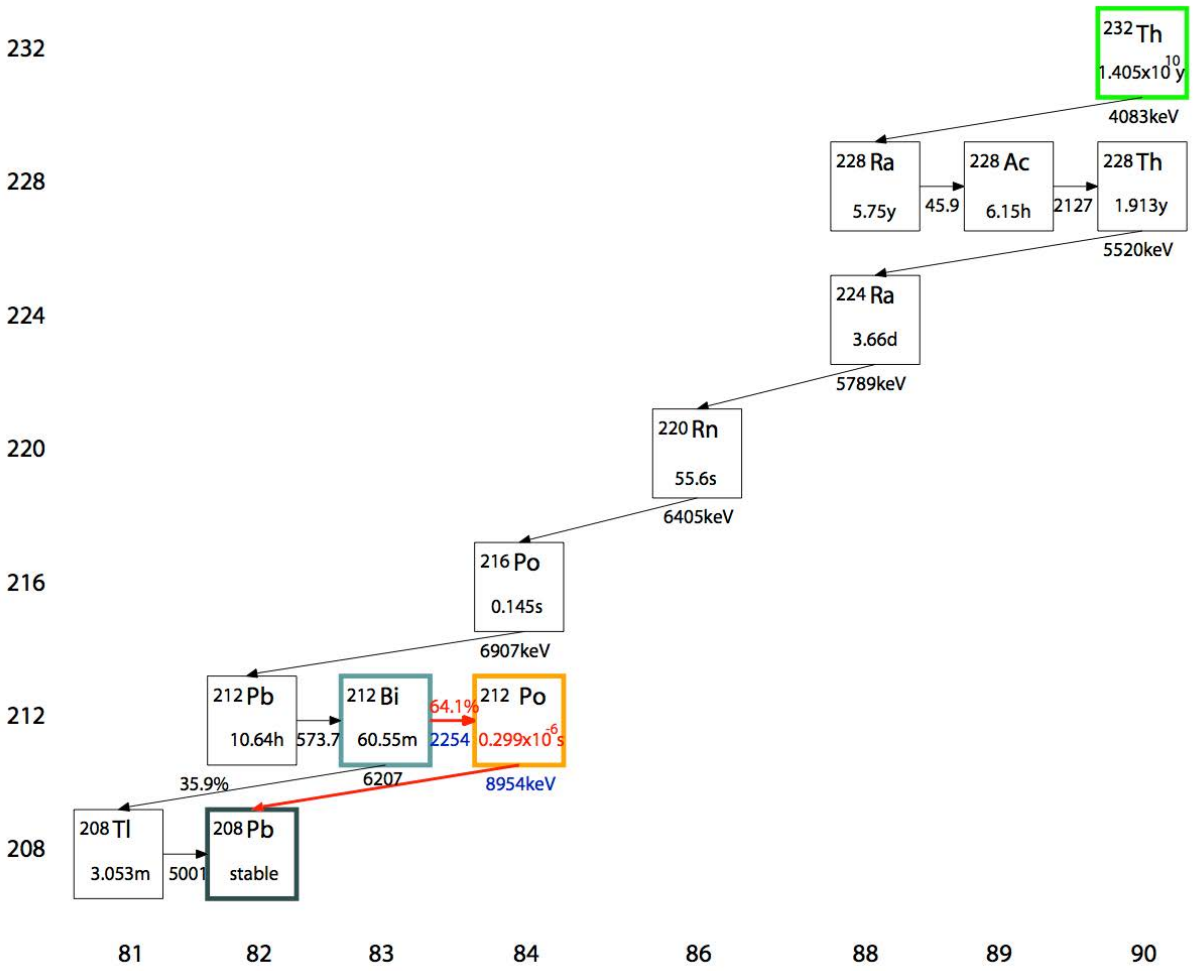

図 D.2　^{232}Th 崩壊系列

付録 E

引張破断強度測定

ここでは、引張破断強度測定実験についてまとめた。

現在のミニバルーンの素材選定時の実験では、実験結果の単位系として [N/cm] を用いていたが [33]、これはフィルムの単位横幅あたりにかかる力である。

試験片形状

プラスチックや金属などの引張強度試験を行うにあたり、JIS 規格では図 E.1 のような形状の試験片を用いるが、本研究の実験においては長方形型の試験片を用いた。フィルムが薄いため、型抜きでは加工できず、手作業によって図 E.1 の形にすることは困難だった。また、不必要な切れ目が入ってしまった場合は、引張試験時にその切れ目部分から断裂するため、単純な形状にする必要があった。

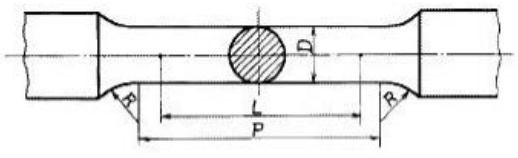

図 E.1　試験片 (JIS 規格)

本研究では幅 1 cm× 長さ 3 cm の長方形に揃えた。このような形状では、つかみ具の部分に引張方向とは垂直な力がかかる。そのため、引張強度測定時には、試験片の真ん中ではなくつかみ具の部分から破断する。したがって、得られる測定値は実際の破断強度ではなく下限値である。

実験装置

引張強度測定器としてデジタルフォースゲージ「ZTA-500」(イマダ) を用いた。最大許容負荷荷重は $-500 \sim +500$ N で、0.1 N の最小分解能を持つ。また、実験の再現性を高めるためにも引張速度を一定にする必要があったため、自動でフォースゲージを移動させる固定計測スタンド「MX2-500」(イマダ) を用いた。本研究では 50 mm/min で引っ張った。

実験時には、フォースゲージ、つかみ具、試験片、スタンドが一直線上になるように注意した。引張方向以外に余計な応力がかかることを防ぐためである。

歪みと応力の関係

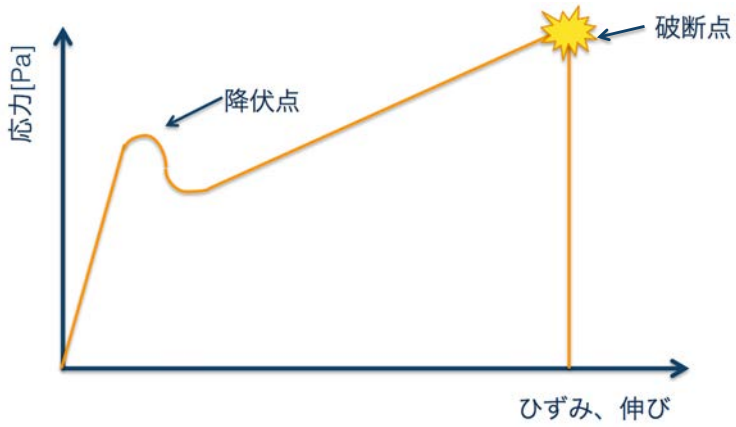

図 E.2　歪みと応力の関係図

引張破断強度試験を行った場合、試験片の伸び (歪み) と加える応力の関係は図 E.2 のようになる。

引っ張り始めは、その応力の強さに伴ってわずかに変位する。その後、降伏点と呼ばれる弾性限内での最大応力点に達する。降伏点を超えると、応力をゼロにしても試験片内に歪みが残る場合がある。さらに応力を加えると傾きが変わり、降伏点到達前と比べて比較的弱い力でも試験片の変位が見られるようになる。変位の限界に達し、試験片が破断する最大応力を与える点を破断点という。

KamLAND-Zen 実験ミニバルーン素材は、破れさえしなければ伸びを考慮しない、というものではない。ミニバルーン形状が変形しないためには、要求された破断強度が、得られた実験結果の降伏点以下である必要がある。

実験装置の評価

本研究で用いた実験装置および試験片形状で、求める破断強度を測定できるか、降伏点が見えるかを試験した。

溶着していない試験片を用いて実験を行い、得られたグラフに降伏点が見られればよく、その降伏点での応力要求値を超えていればよい。図 E.3 に 50 μm 厚の未溶着 PEN サンプル A の引張破断強度試験結果を示す。変位が 2 mm 程の点から傾きが変わっており、降伏点とみられる。この点での応力はおよそ 72 N/cm であり要求値 10 N/cm を満たす。式 4.6 から 25 μm 厚へ換算してもその強度は 36 N/cm であり、要求値を満たしている。破断点はつかみ具の部分であった。本測定装置は、研究目的に対して十分な測定能力を有しているといえる。

本文中では、最も強度が弱くなると予想される、溶着した試験片についての測定・評価をまとめた。

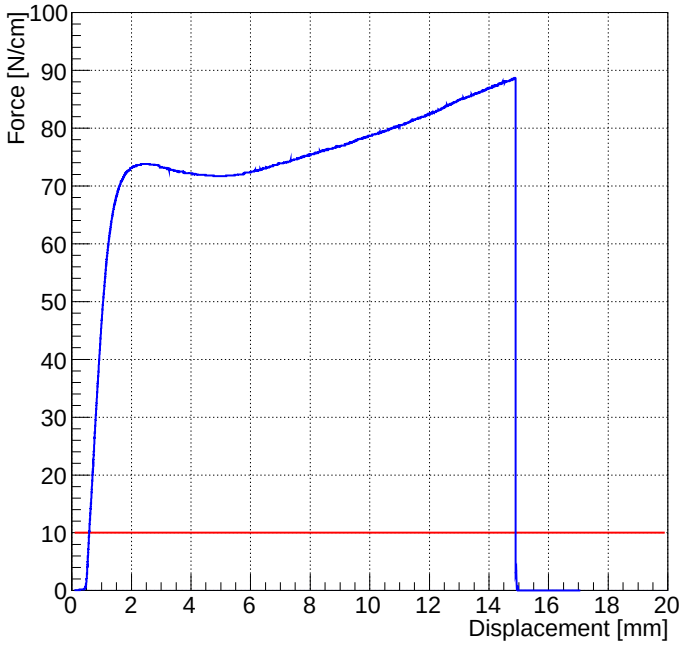

図 E.3　PEN サンプル A(50 μm 厚) の引張破断強度試験結果。破断点は、(Displacement, Force) = (14.864, 88.7) であり、要求値は 10 N/cm(赤線)。

付録 F

後方散乱測定

ここでは、液体シンチレータの発光量を測定する際に用いられる「後方散乱」（backscatter）を利用した発光量測定についてまとめる。

γ 線と物質の相互作用

γ 線と物質との相互作用は、そのエネルギーによって支配的になる相互作用が異なる。図 F.1 に、発光量測定で用いる液体シンチレータの主な構成元素である炭素と γ 線との反応断面積を示す。本実験で用いた線源の γ 線ではコンプトン効果が支配的である。

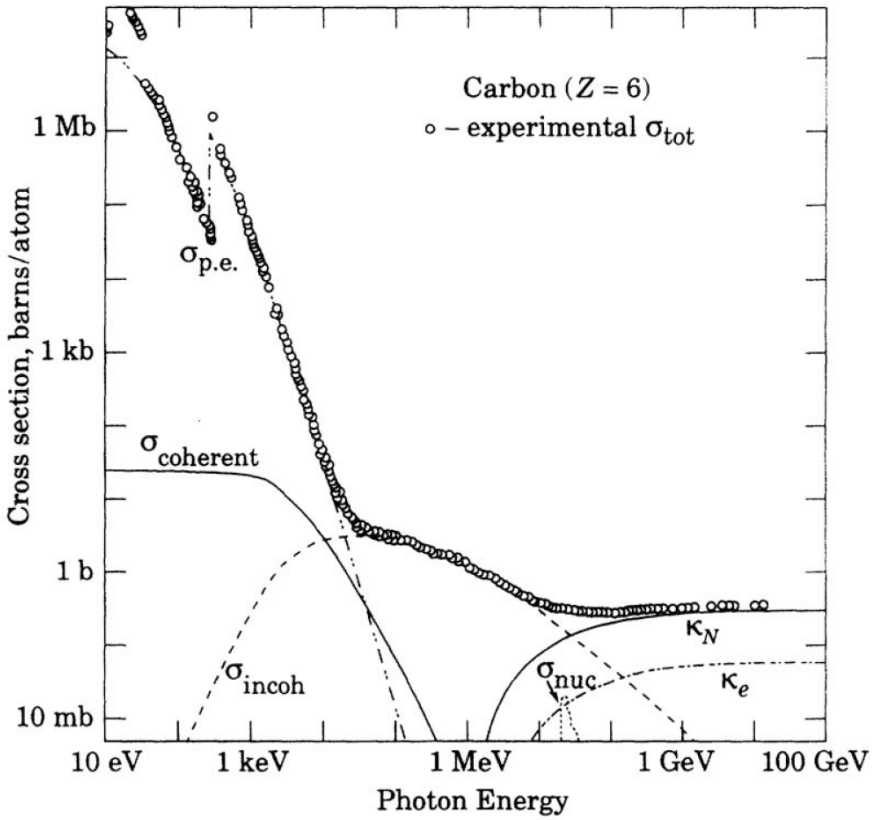

図 F.1　γ 線と炭素の反応断面積：$\sigma_{p.e.}$ は光電効果、$\sigma_{coheremt}$ はレイリー散乱、κ_n は原子核の場での対生成、κ_e は電子の場での対生成、σ_{nuc} は原子核による光の吸収を示す。

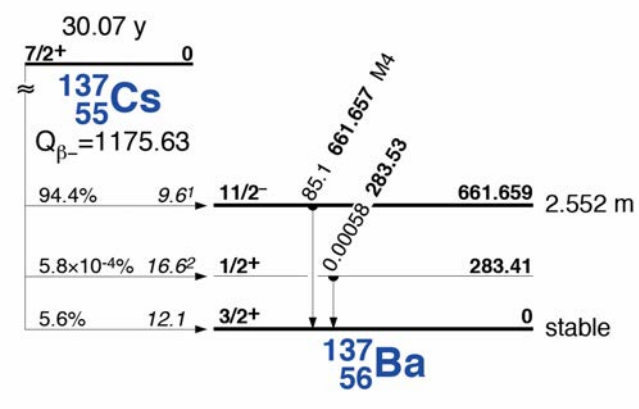

図 F.2　^{137}Cs の崩壊図 [53]。

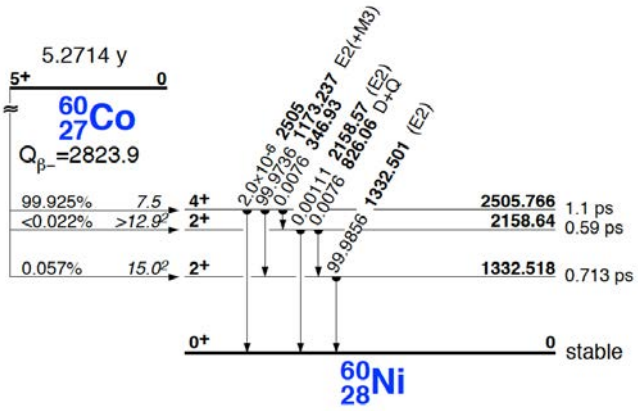

図 F.3　^{60}Co の崩壊図 [53]。

コンプトン効果

光子が電子と衝突することにより、エネルギーの一部を電子に与えて散乱される現象（図 F.4）。

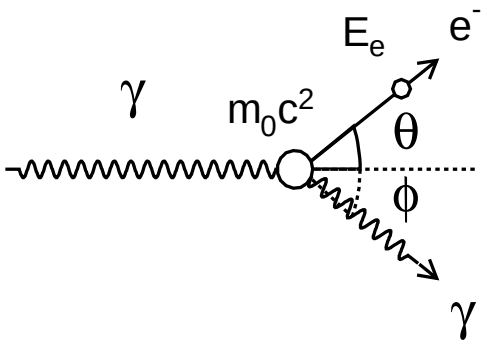

図 F.4　コンプトン散乱の概念図

エネルギー・運動量保存則から、反跳電子のエネルギー E_e は

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}(1 - \cos\theta)} \tag{F.1}$$

と表せる。ただし、m_0c^2 は電子の静止質量 (0.511 MeV)、E_γ は γ 線のエネルギー。式 F.1 より $\theta = 180$ 度のとき、すなわち後方散乱のときに反跳電子は最大のエネルギーをもち、このときのエネルギー $E_e(\mathrm{max})$ をコンプトンエッジという。

$$E_e(\mathrm{max}) = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_0 c^2}} \tag{F.2}$$

測定方法

液体シンチレータで後方散乱イベントによる反跳電子の発光を捉え、反跳後の γ 線を NaI シンチレータで同時計測を行う。この方法により、コンプトンエッジのモノクロなエネルギーを用いた液体シンチレータの発光量を測定できる。概念図を図 F.5 に示した。

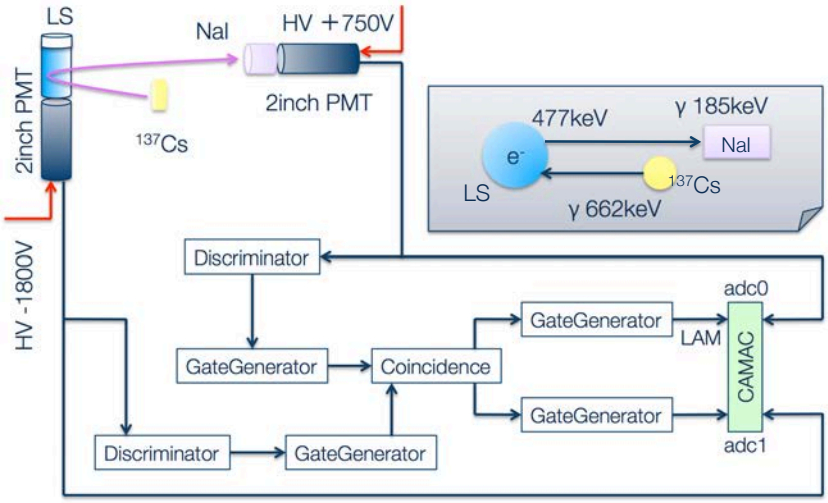

図 F.5　BackScatter 測定概念図

表 F.1 に使用線源のエネルギーと、後方散乱イベントによる反跳電子エネルギーと γ 線エネルギーを示した。測定装置の都合上、線源位置が 180 度ではなく 160 度の位置で実験を行ったものもあるので、160 度でのエネルギーも記載した (表 F.2)。なお反跳角度の誤差による影響は、本測定の発光量を求める際には無視できるほど小さくなる。

表 F.1　後方散乱 ($\theta = 180$ 度) イベントの電子および γ 線エネルギー)

線源	γ 線エネルギー	反跳電子 (θ =180 度)	反跳 γ 線 (θ =180 度)
^{137}Cs	662 keV	477 keV	185 keV
^{60}Co	1173 keV	963.2 keV	209.8 keV
	1332.5 keV	1118.1 keV	214.4 keV

表 F.2　後方散乱 ($\theta = 160$ 度) イベントの電子および γ 線エネルギー)

線源	γ 線エネルギー	反跳電子 (θ =160 度)	反跳 γ 線 (θ =160 度)
^{137}Cs	662 keV	473.55 keV	188.45 keV
^{60}Co	1173 keV	957.87 keV	215.13 keV
	1332.5 keV	1112.54 keV	219.96 keV

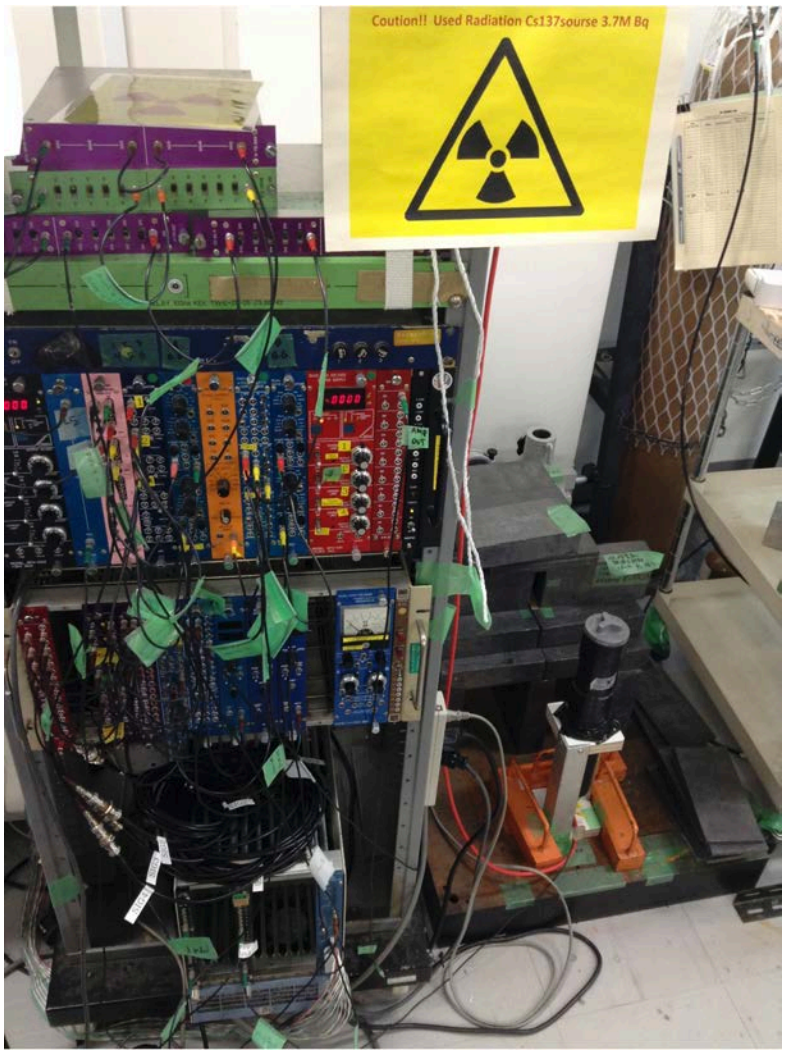

図 F.6　BackScatter 測定装置

付録 G

^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測による α 線発光量測定

ここでは、^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測を利用した α 線での発光量測定についてまとめる。

発光量測定を行う際、固体シンチレータに対しては線源を直接当てることができるが、α 線源の形状を考慮すると、液体シンチレータに対しては線源が汚染される可能性があるため、線源と液体シンチレータを離して設置する必要がある。しかし α 線の飛程は短く、5 MeV の α 線は空気中で約 3 cm ほどしか飛ばない。そこで ^{222}Rn を液体シンチレータ中に溶かしこみ、その娘核である ^{214}Po の 7687 keV - α 線 (図 G.1) を用いて α 線に対する発光量を求める。^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測を行うことで ^{214}Po の 7687 keV - α 線による信号のみを高精度で選択する。

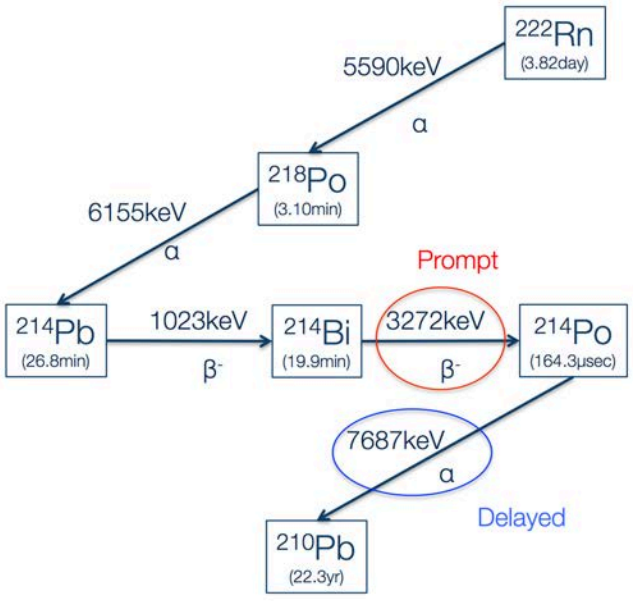

図 G.1　^{222}Rn 崩壊系列

Rn バブリングと放射平衡

^{222}Rn バブリングには図 G.2 のような装置を用いた。

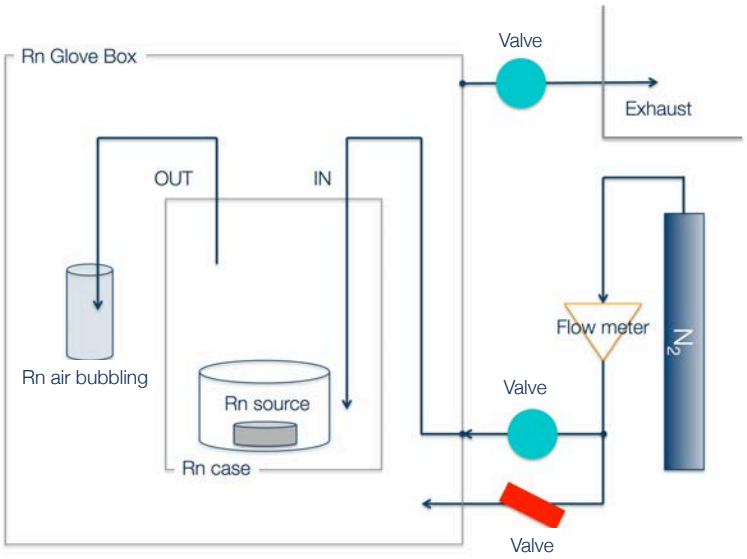

図 G.2　Rn バブリング装置概念図

なお、^{222}Rn の崩壊系列の娘核種を利用して放射線測定を行う際、親核と娘核の放射能の量的な関係が一定の平衡状態 (放射平衡) になっている必要がある。^{222}Rn から ^{210}Po までの系列崩壊がどれくらいの時間で放射平衡に達するかを簡単に議論する。

核種が N 個存在する時、放射性核種の単位時間あたりの壊変率は (壊変率を λ として)

$$-\frac{dN(t)}{dt} = \lambda N(t) \tag{G.1}$$

これより

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \tag{G.2}$$

(ただし $N_0 = N(t=0)$ である)

半減期 $T_{1/2}$ を求めると

$$T_{1/2} = \frac{1}{\lambda}\ln\frac{1}{2} = \frac{0.693}{\lambda} \tag{G.3}$$

表 G.1 に半減期と壊変定数の関係を示す [54]。

一連の核種が崩壊系列をつくる場合、時刻 t における i 番目の放射性核種は Bateman の式で以下のように与えられる。

$$N_i(t) = \lambda_1\lambda_2\cdots\lambda_{i-1}N_1(0)\sum_{j=1}^{i}\frac{e^{-\lambda_i t}}{\prod_{k\neq j}(\lambda_k-\lambda_j)} \tag{G.4}$$

ここで ^{222}Rn が $N_1(0) = 10000$ だけあった場合の、娘核の崩壊率の時間変化を図 G.3 に示す。^{222}Rn 源を用いた際、約 200 分で放射平衡に達することがわかる。

表 G.1　半減期と壊変定数の関係 (分岐比の小さい ^{218}At と ^{210}Tl は除く)

元素	半減期 $T_{1/2}$	壊変定数 $\lambda(\frac{\ln 2}{T_{1/2}[\mathrm{min}]})$
^{222}Rn	3.8235 day	1.259×10^{-4}
^{218}Po	3.10 min	0.2236
^{214}Pb	26.8 min	0.02586
^{214}Bi	19.9 min	0.03483
^{210}Po	164.3 μsec	2.531×10^{5}

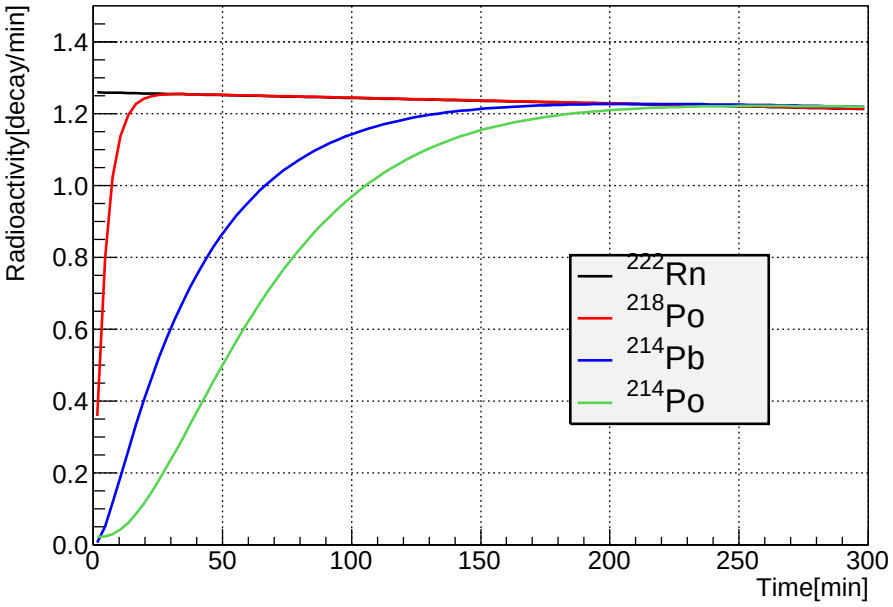

図 G.3　$t = 0$ で ^{222}Rn が 10000 個存在すると仮定した時の娘核の時間推移。ただし、^{222}Rn ～ ^{210}Pb までの間の核で、分岐比の小さい ^{218}At と ^{210}Tl は除いてある。

^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測による α 線発光量測定

図 G.4 のような回路を用いて ^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測による α 線発光量測定を行った。タイミング相関図は図 G.5 に示した。先発信号に対して 1 msec 以内に来た後発信号に対して gate を開き、先発信号-後発信号間の時間差を clock と scaler によってカウントする。ここで TDC ではなく scaler を導入したのは、一般の TDC では 1 μsec までしか測定できないためである。また、1 msec 以内に後発信号が検知されなかった場合でも、後発信号側の LAM[*1] を立てて先発ー後発信号の時間差測定および Charge ADC 値を clear する設定となっているが、CAMAC の処理能力の都合上 (ADC 2 つと scaler の計 3 つを同時に計算した際、まれにうまくいかない場合がある)、先発信号ー後発信号の時間差が 0 sec 付近と 1 μsec 直近はイベントの選択効率が悪いため、本研究の解析では用いていない。偶発イベントの混入を減らすため、Discriminator の threshold は高め (400 mV) に設定した。

[*1] LAM: CAMAC モジュールの基板上に LAM スイッチがある。LAM を立たせたモジュールをトリガーとして読み込みを行う。

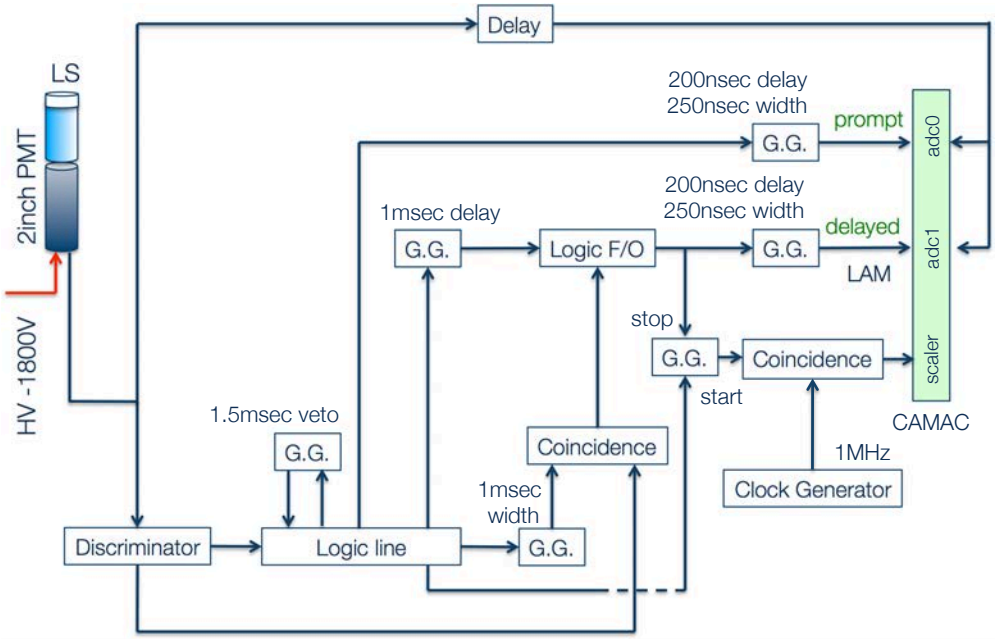

図 G.4　^{214}Bi - ^{214}Po 遅延同時計測論理回路。この回路において CAMAC ADC の不感時間を 1.5 msec として veto している。「G.G.」は GateGenerator の略。prompt event から 1 msec 間に delayed event が来た場合に LAM を立ててデータ取得を行う。この時間差を scaler のカウント数にて計測している。

表 G.2　図 G.4 に用いているモジュール

モジュール	会社 型番
CAMAC	TOYO CC/7700
prompt 側 ADC	REPIC RPC-022
delayed 側 ADC	HOSHIN C0009
scaler	Kaizu works KC3122

表 G.3　図 G.4 に用いている PMT スペック

PMT number	H1161-50 RC5301
Model number	H1161 model
Tube diameter	2inch
Spectral response range	300 ∼ 600 nm
Dynode structure	line
# of stages	12
Q.E at peak	26%
Window material	Borosilicate Glass
Photocathcade	Bialkali
Overall voltage	-2000 V
Bleeder current	1.23 mA

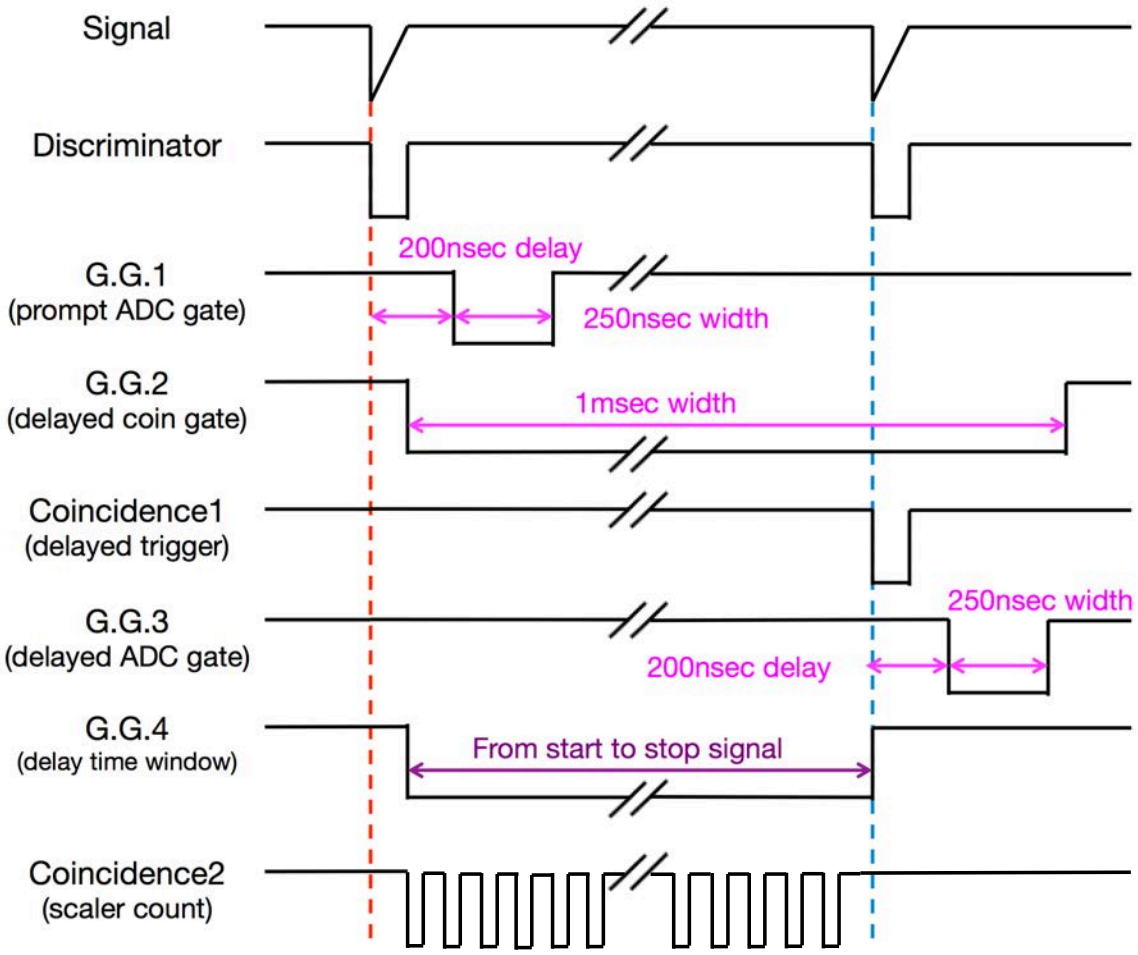

図 G.5　図 G.4 の回路のタイミング相関図。delayed event が 1 msec 以内に来なかった場合、1 msec delay させた「G.G.6」によって Coincidence2 の scaler count は stop される。また G.G.3 の gate を開いて強制的に LAM を立て、各 ADC 値および scaler count を clear する。すなわち、scaler カウントが 1000 になっている event は BiPo の event ではなく、また prompt spectrum は single spectrum に相当する。

予備実験 (KamLAND-LS の α クエンチングファクター測定)

KamLAND-LS の α クエンチングファクターは約 1/13 とわかっているが [35]、本研究で用いるエネルギー領域での値を見積もる。BiPo の遅延同時計測によって α 線発光量測定をした上で、後方散乱イベントによる発光量測定も行うことで α クエンチングファクターを求めることができる。

実験方法

100 ml の KamLAND-LS を作成し、底面が平らな特注バイアルに入れた (図 G.6)。N_2 パージを必要量 (500 ml/min × 3 min) 行い、本付録内で上述した方法で Rn バブリングした。

図 G.6　底面平らな特注バイアル。PMT 光電面上に置いた際に、バイアル底面の形状と光電面の形状を近くすることで空気層が少なくなる。さらにバイアル底面と光電面の間隙をミネラルオイルで埋め、屈折・散乱による影響を低減する。このバイアルを用いることでエネルギー分解能が向上する。

BiPo 遅延同時計測による α 発光量測定

測定結果を以下に示す。先発信号 (^{214}Bi) と後発信号 (^{214}Po) の時間差が 80 ～ 950 μsec のイベントのみを用いることで、得られた半減期 163.7 ± 1.3 μsec は ^{214}Bi の半減期 164.3 μsec に一致しており、delayed 側ピークのイベント取得効率が良くなっている。

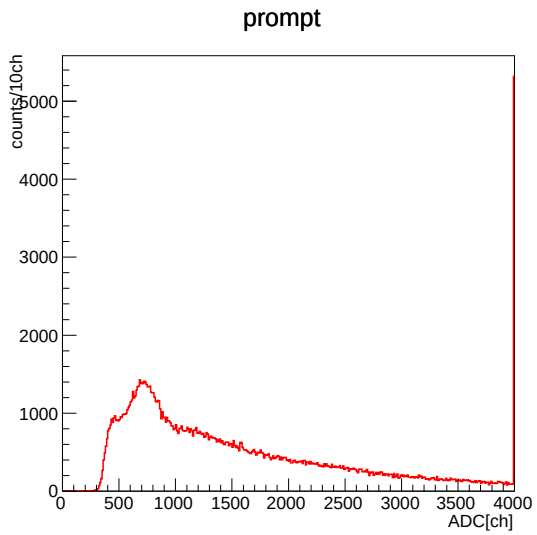

図 G.7　BiPo 遅延同時計測結果 prompt 側スペクトル

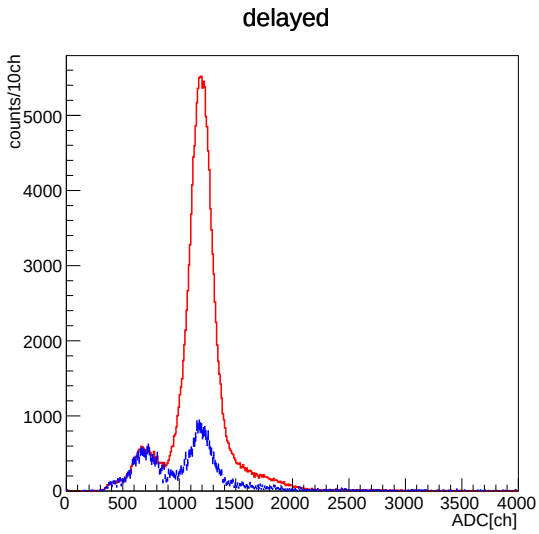

図 G.8　赤線が BiPo 遅延同時計測結果 delayed 側スペクトル。青線が偶発イベントのスペクトル。

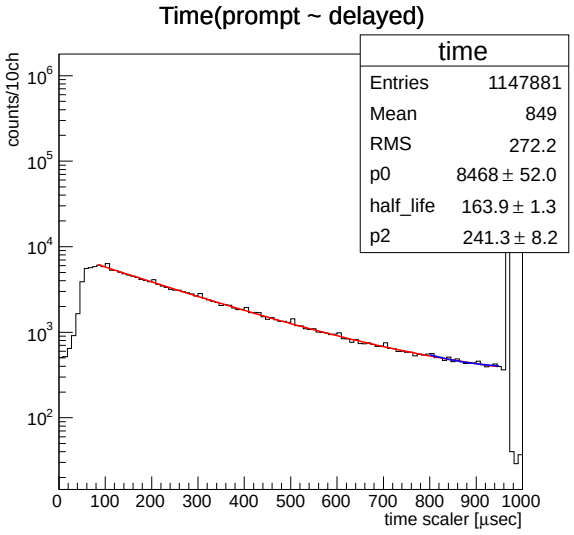

図 G.9　先発信号と後発信号の時間差のヒストグラム。フィッティングによって得られた半減期は 163.9 ± 1.3 μsec で ^{214}Bi の半減期 164.3 μsec に一致している。

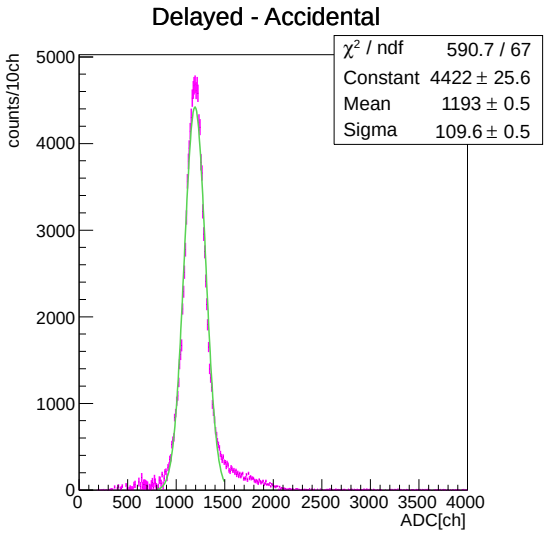

図 G.10　delayed 側スペクトルから偶発イベントを差し引いたもの。^{214}Po のピークは 1193 ± 0.5 ADC-ch にある。

偶発イベントを delayed イベントから差し引くと図 G.10 のようになった。

ADC キャリブレーション

^{60}Co と ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定を行い、これによって BiPo 遅延同時計測による α 線発光量測定時の delayed 側 ADC の ADC キャリブレーションを行った (図 G.11)。後方散乱測定については付録 F に詳細を記した。

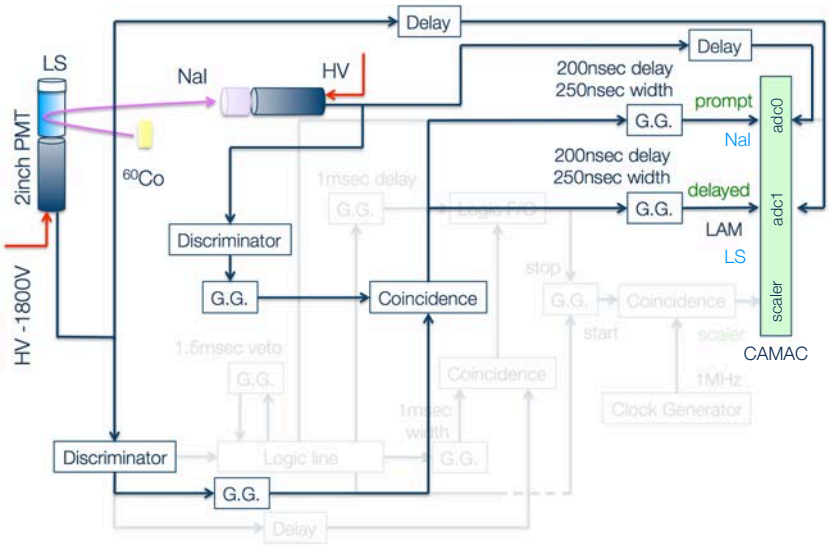

図 G.11　後方散乱測定用論理回路 (BiPo 遅延同時計測用論理回路と併用)。Gate Generator を共通にし、BiPo 遅延同時計測時の delayed 側 ADC を後方散乱測定での LS 側 ADC に用いることで ADC-energy のキャリブレーションが可能となっている。

図 G.12~G.15 に後方散乱測定結果を、図 G.16 にキャリブレーション結果を示した。

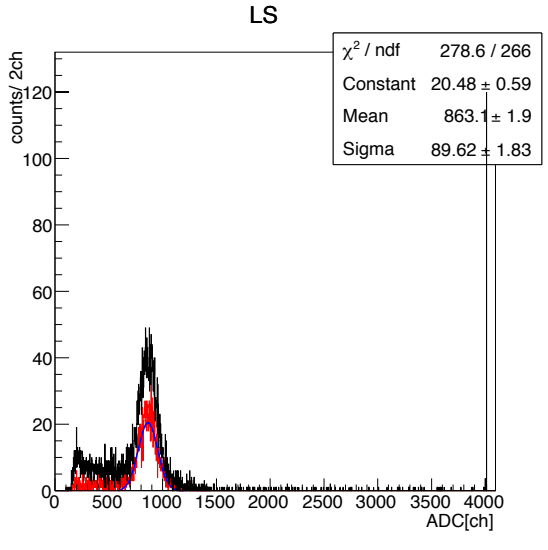

図 G.12　^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定 LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

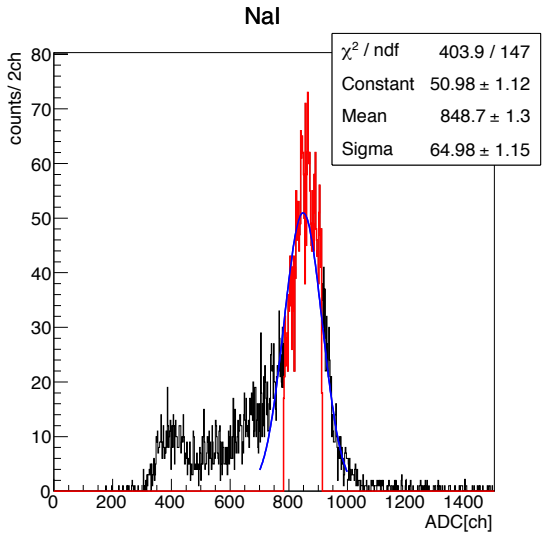

図 G.13　^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定 NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

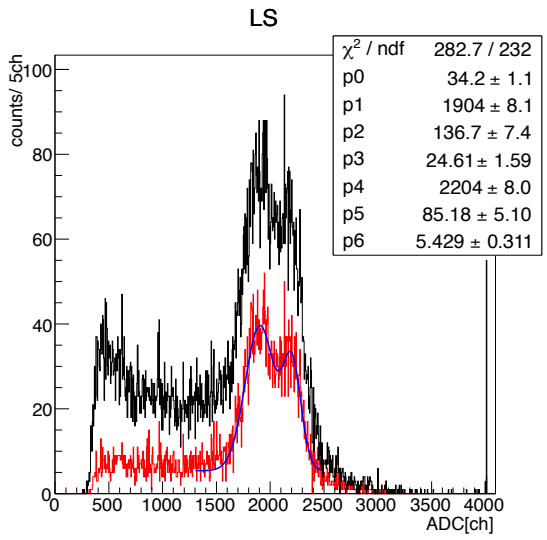

図 G.14　^{60}Co の後方散乱イベントによる発光量測定 LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線の 2 ピーク (コンプトンエッジによるイベント) をダブルガウシアンでフィットしてある。

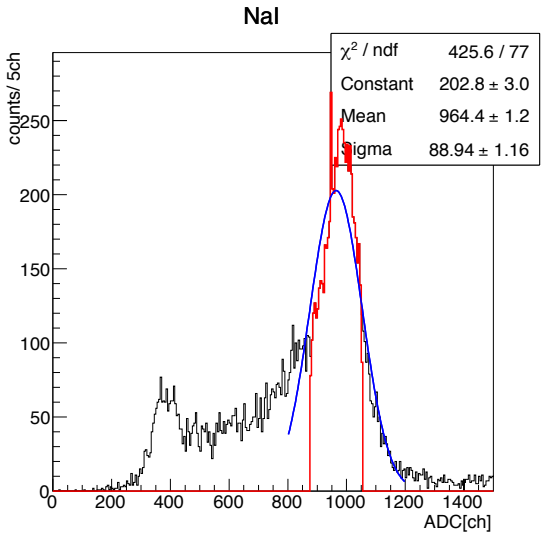

図 G.15　^{60}Co の後方散乱イベントによる発光量測定 NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

表 G.4　後方散乱事象による発光量測定結果まとめ

Back scatterd electron energy [keV]	ADC [ch]
0 (pedestal)	83.45 ± 0.06
473.55 (^{137}Cs)	863.1 ± 1.9
957.87 (^{60}Co)	1904 ± 8.1
1112.54 (^{60}Co)	2204 ± 8.0

図 G.10、図 G.16 から、KamLAND-LS の ^{214}Po の α 線に対するクエンチングファクターは

$$(\alpha\text{クエンチングファクター}) = \frac{1}{12.5 \pm 0.539} \tag{G.5}$$

と求まった。またこの値から、KamLAND-LS では ^{214}Po の 7687 keV の α 線は

$$7687\ \text{keV} \times \frac{1}{12.5\ \pm\ 0.539} = 614\ \pm\ 26.9\ \text{keV-visible} \tag{G.6}$$

だけの visible energy をもって観測される。なお、求められた α クエンチングファクターは参考文献値 [35] と比べて誤差幅の範囲内で一致しており、測定装置の精度が十分であることも確認された。

なお、本予備実験での 100 ml KamLAND-LS の発光量ピーク位置は、本文中での 1 mm 厚分での KamLAND-LS のピーク位置とは異なっている。これはバイアル中に入れた KamLAND-LS 量が異なるために PMT へ入る立体角が変わることに起因している。

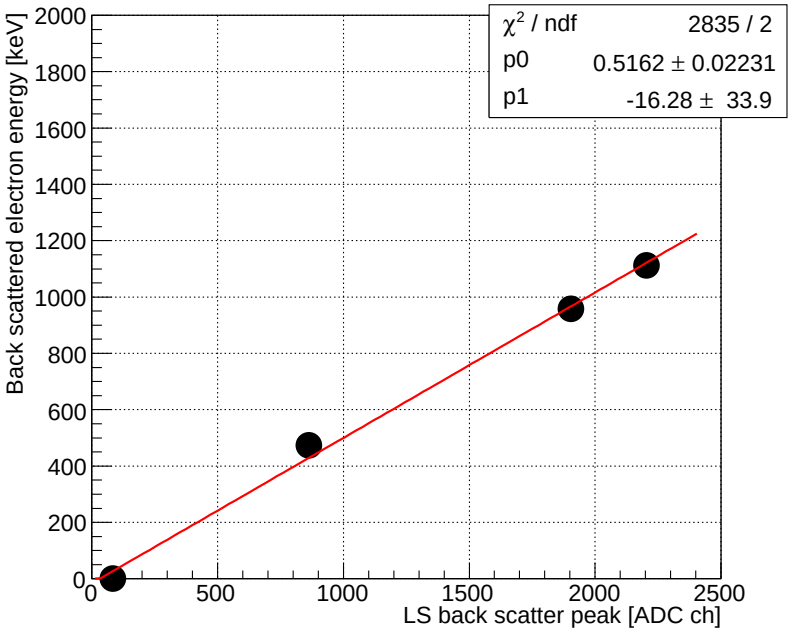

図 G.16　ADC キャリブレーション

付録 H

加速劣化試験

ここでは、KamLAND グループで行われている経年劣化試験に対する評価方法についてまとめる。

KamLAND グループでは、液体シンチレータやバルーンフィルムの経年劣化試験を行う際にアレニウスの式に基づいた加速劣化試験を行っている。

アレニウスの式

アレニウスの式、とはある温度での化学反応速度を予測するものである。化学反応の速度 k は、1 モルあたりの活性化エネルギーを E_a として

$$k = A \exp\left\{-\frac{E_a}{RT}\right\} \tag{H.1}$$

と表される。ただし A は温度と独立な定数で、R および T はそれぞれ気体定数と温度である。また活性化エネルギー E_a の単位として、1 モルあたりではなく 1 粒子あたりで考えると

$$k = A \exp\left\{-\frac{E_a}{k_B T}\right\} \tag{H.2}$$

となる。ただし k_B はボルツマン定数。

室温 T_0 における反応速度が k_0 であった時、それよりも高い温度 $T(T > T_0)$ における反応速度 k は、$k = A\exp(-E_a/k_BT)$ および $k_0 = A\exp(-E_a/k_BT_0)$ より

$$\frac{k}{k_0} = \exp\left\{\frac{E_a}{k_B T_0} - \frac{E_a}{k_B T}\right\} \tag{H.3}$$

対数をとれば

$$\ln(k - k_0) = \frac{E_a}{k_B T T_0}(T - T_0) \cong \frac{E_a}{k_B T_0^2}(T - T_0) \tag{H.4}$$

ここで温度 T と室温 T_0 の差は活性化エネルギーに対して無視できるものとした。したがって

$$\ln(k - k_0) = const. \times (T - T_0) \tag{H.5}$$

が導かれる。室温 T_0 に対して一定温度 $(T - T_0)$ だけ上昇する際に、ある定数倍 (k/k_0) だけ化学反応速度があがることがわかる。この化学反応速度の上昇係数は化学反応に関わる活性化エネルギー等に依存し、適用される反応によって異なる。

図 H.1　恒温槽

KamLAND グループにおける加速劣化試験

KamLAND グループにおける加速劣化試験では、温度が 10 ℃上昇するごとに反応速度が 2 倍になる、というコンサバティブな仮定を用いている。前述のように温度変化に伴う反応速度の上昇率は経験的に与えられるもののため、正確な反応速度係数を求めるには、加速劣化試験を通して化学反応における劣化具合を確認し逆算する必要がある。しかし長期間の使用を視野に入れた KamLAND 実験において、加速劣化試験によって係数を求めることができるほど大きな劣化が見えるものは使用できないため、正確な数字は不明である。

さて、KamLAND グループで加速劣化試験を行う際には KamLAND 内の環境である 15 ℃に対して 30 ℃高い 45 ℃の恒温槽を用意し、これによって対象の経年劣化を評価する。上記「10 ℃ごとに反応速度が 2 倍」という仮定を受け入れると、この 45 ℃恒温槽内での劣化速度は室温に比べて 8 倍となる。

加速劣化試験を行うに当たり、他物資との化学反応ではなく、実験対象となるものそのものが温度上昇で変化しないことに注意しなければならない。本研究では 45 ℃以下で融点に達するものはなく、加速劣化試験を行うことができる。

なお、加速劣化は、他に「エイジング」「エージング」「aging」などと称されている。

bis-MSB 添加デカン-LS の長期安定性評価

第 5 章で評価を行った「bis-MSB 添加デカン-LS」について、加速劣化試験を通して長期安定性の評価を行った。ただし後述するようにその評価方法の精度が低かったため、今後追加実験が必要である。

実験方法

表 H.1 のように bis-MSB 添加しているデカン-LS と、無添加のデカン-LS を用意し、それぞれを室温保存 (15 ℃) と恒温槽保存 (45 ℃) することで加速劣化試験を行った。本測定における保存期間は 4 ヶ月であったので、付録 H より加速劣化速度は 8 倍になっていると仮定すると、約 32 ヶ月分の劣化具合を観察できることとなる。デカン-LS_A と デカン-LS_B を比較することで、デカン-LS 自体の劣化を評価する。デカン-LS_C と デカン-LS_D を比較することで bis-MSB 添加デカン-LS の劣化を評価できるので、その劣化具合がデカン-LS 自体のものよりも同等かそれ以下であれば、bis-MSB を添加したことによる劣化速度の上昇は否定できる。

劣化具合は透過率および発光量に顕著に現れるため、それらに関して測定を行い、劣化具合を評価した。透過率測定方法および発光量測定方法は本文中と同様であるので割愛する。

表 H.1　bis-MSB 添加デカン-LS の加速劣化試験用サンプル。

サンプル名	bis-MSB 添加量　[g/120 ml]	保管環境
デカン-LS_A	0	15 ℃
デカン-LS_B	0	45 ℃ (8 倍速劣化)
デカン-LS_C	0.012	15 ℃
デカン-LS_D	0.012	45 ℃ (8 倍速劣化)

実験結果

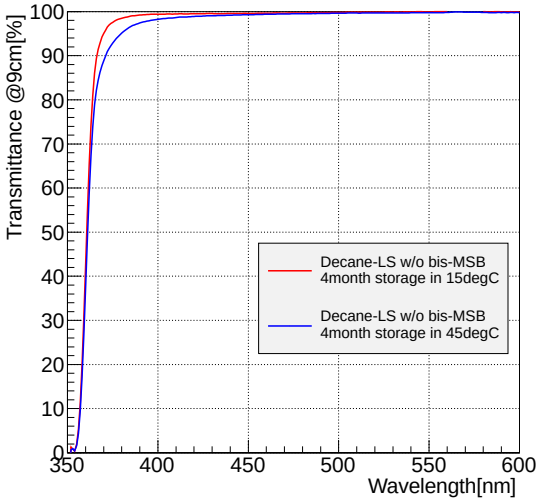

図 H.2　デカン-LS_A(赤) と デカン-LS_B(青)。どちらもシクロヘキサンをベースとした 9 cm 長の透過率である。

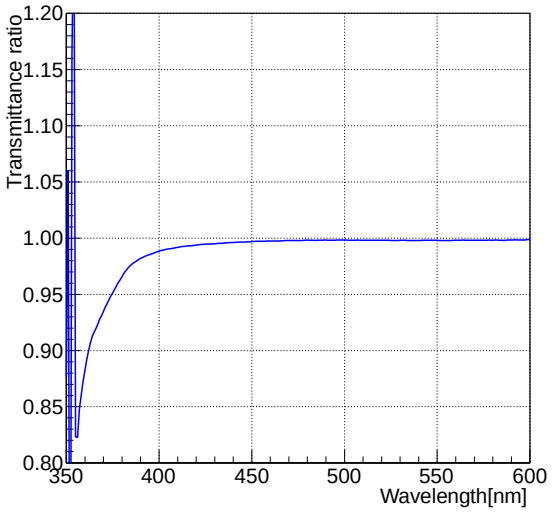

図 H.3　加速劣化試験によるデカン-LS(w/o bis-MSB) の変化度; デカン-LS_B / デカン-LS_A。

図 H.2、H.3 にデカン-LS 自体の劣化具合を、図 H.4、H.5 には bis-MSB を添加したデカン-LS の劣化具合を示す。どちらも吸収ピークをもつ波長領域帯では透過率の変化が見られるが、どちらも 420 nm よ

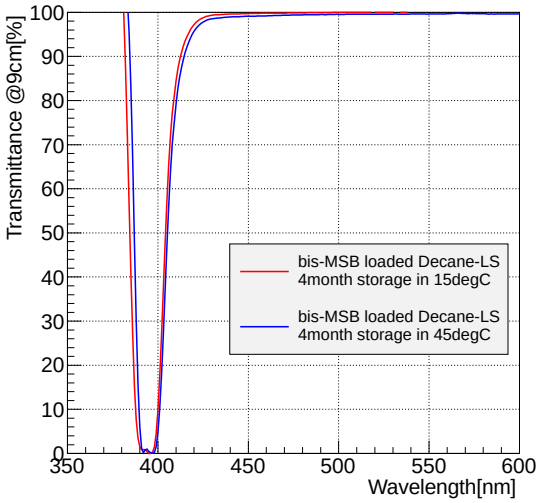

図 H.4　デカン-LS_C(赤) と デカン-LS_D(青)。どちらもシクロヘキサンをベースとした 9 cm 長の透過率である。380 nm より短波長側で透過率の値が振りきっているが、これは測定値が 0/0 に近くなったためであり、実際はほぼ 0% である。

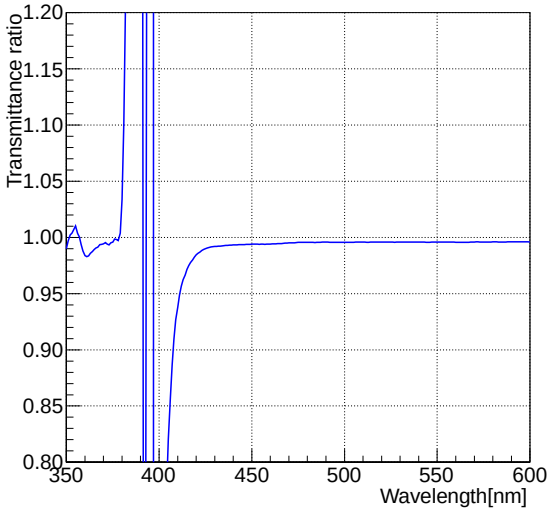

図 H.5　加速劣化試験によるデカン-LS(bis-MSB 添加) の変化度; デカン-LS_C / デカン-LS_D。短波長側では、元々の透過率が 0% のため、比を取った際に値が振りきっている。

り長波長側での透過率変化度は測定誤差内であった (透過率変化度は式 H.6 とした)。

$$\text{透過率変化度} \equiv \frac{\text{45 ℃で恒温槽保存 (加速劣化) したデカン-LS の透過率}}{\text{15 ℃で常温保存したデカン-LS の透過率}} \tag{H.6}$$

図 H.6~H.13 に発光量測定結果を示す。

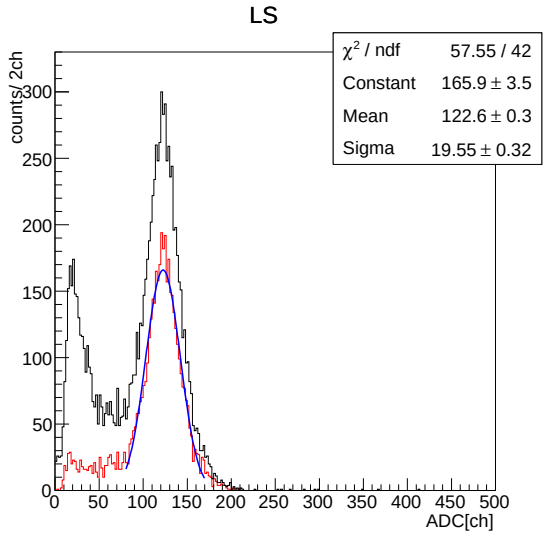

図 H.6　デカン-LS_A の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

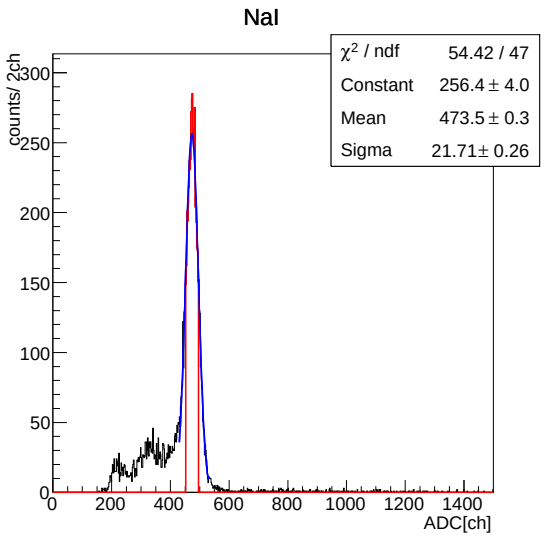

図 H.7　デカン-LS_A の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

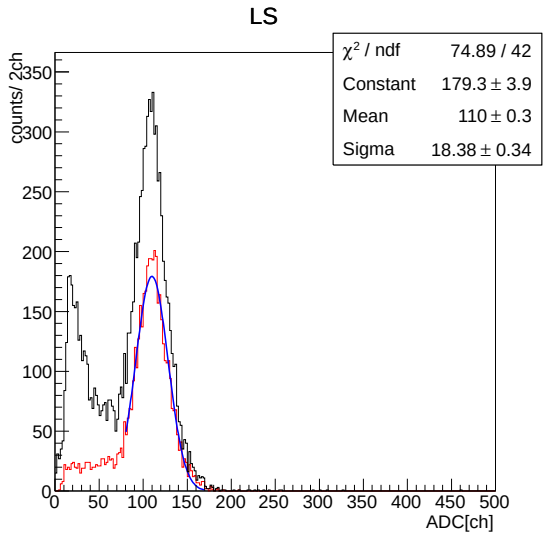

図 H.8　デカン-LS_B の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

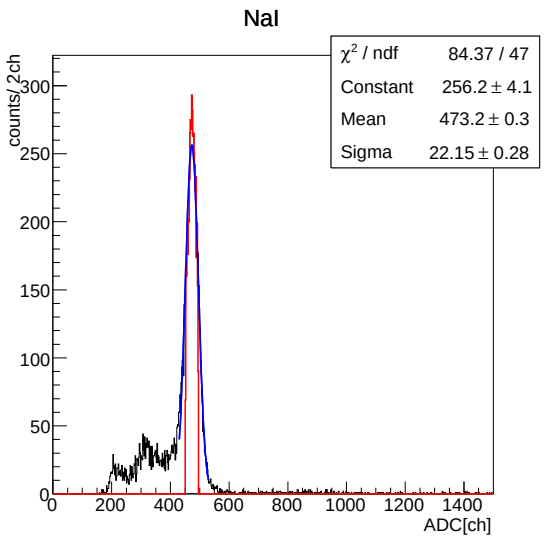

図 H.9　デカン-LS_B の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

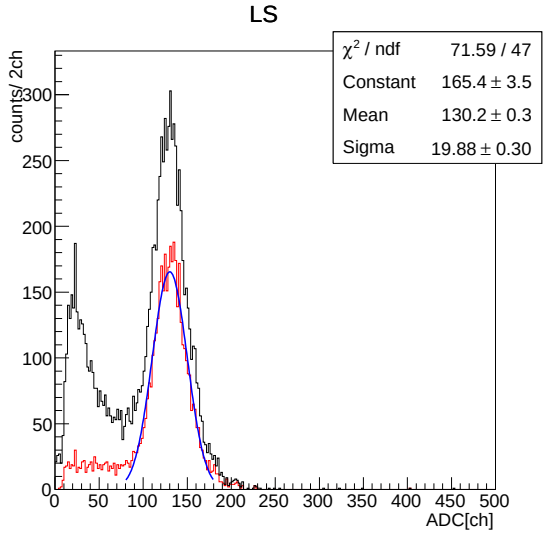

図 H.10　デカン-LS_C の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

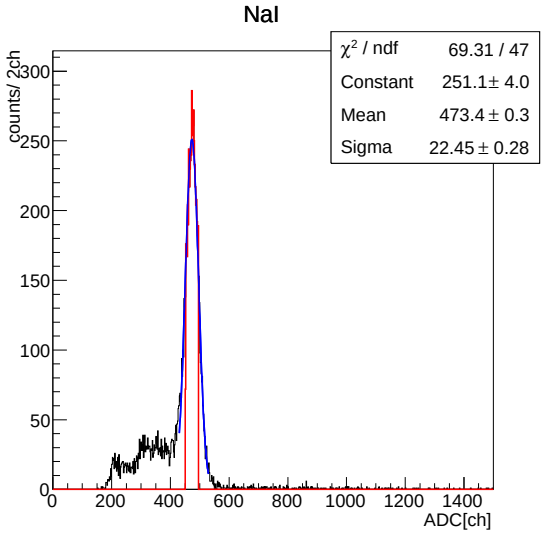

図 H.11　デカン-LS_C の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

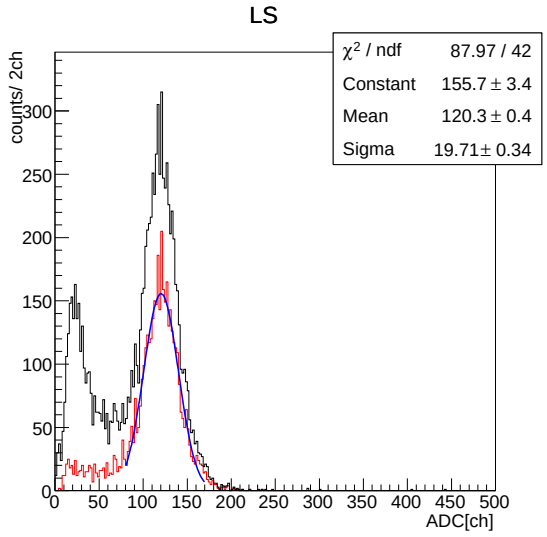

図 H.12　デカン-LS_D の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。LS 側。黒線は全イベント、赤線は NaI 側ピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。赤線のピーク (コンプトンエッジによるイベント) をガウシアンフィットしてある。

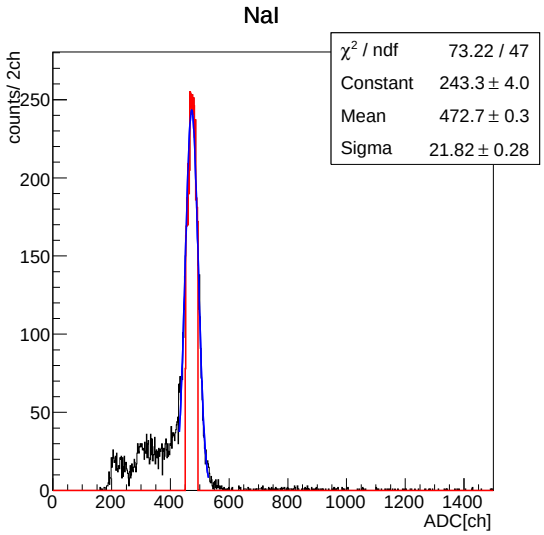

図 H.13　デカン-LS_D の ^{137}Cs の後方散乱イベントによる発光量測定結果。NaI 側。黒線は全イベント、赤線は反跳電子イベントピークの中心値から $\pm 1\sigma$ のイベントカットによるもの。

表 H.2　加速劣化試験によるデカン-LS の劣化具合。

サンプル名	発光量　[ADC ch]	発光量減少率
デカン-LS_A	122.6 ± 0.3	10　± 3 %
デカン-LS_B	110 ± 0.3	
デカン-LS_C	130.2 ± 0.3	8.5　± 3 %
デカン-LS_D	120.3 ± 0.4	

表 H.2 に加速劣化試験による発光量の減少率をまとめた。減少率は式 H.7 で定義した。

$$\text{発光量減少率 [\%]} \equiv \left(1 - \frac{\text{45 ℃で恒温槽保存 (加速劣化) したデカン-LS の発光量}}{\text{15 ℃で常温保存したデカン-LS の発光量}}\right) \times 100 \qquad \text{(H.7)}$$

考察とまとめ

以上の結果より、bis-MSB 添加デカン-LS の劣化具合は、デカン-LS 自体の劣化具合の範囲内に収まっており、bis-MSB を添加したことによる劣化速度上昇などの問題は確認されなかった。しかし、bis-MSB を添加していないデカン-LS の方が透過率・発光量ともに劣化具合が大きい。KamLAND で用いられている液体シンチレータは、長期安定性をもつよう設計されており、本研究におけるデカン-LS の劣化具合はその想定外であった。そのため、このデカン-LS の長期安定性の評価実験の際に酸素の混入などが考えられ、より高精度での再実験が求められる。

付録 I

超音波溶着法

溶着機

PEN(**P**oly**E**thylene**N**aphthalate) の融点が 265∼280 ℃と高く熱溶着できない可能性があったため、超音波溶着法による溶着を試みた。結果的に熱溶着 (インパルス溶着) が可能であったため本文中に記載したが、超音波溶着については付録として実験結果を残しておく。使用したサンプルは TEIIJIN 社製の PEN サンプル B である。

超音波溶着法について

溶着部に対して超音波を出す振動子を押し当て、超音波による瞬間的な溶融と局所的な圧力によって溶着する方法。本研究では EMASON 仙台支店の BRANSON の超音波溶着機でテストさせていただいた。

超音波溶着機は主に上から超音波を出す振動子、振動を溶着試料に伝える金属部 (ホーン)、受けジグから成る。また超音波の周波数帯として 20 kHz および 40 kHz のものがあり、20 kHz のものがより大型でプレス溶着に向いている。ホーンは付け替えが可能になっており、図 I.1 のようにプレス用の大きく平たいものから、点で溶着するような先端の尖ったものまである。受けジグも、固定するものから回転するものまで多様にある。

溶着試験 1(プレス溶着)

超音波溶着線幅は、振動子の幅によらず、受けジグの幅に依存する。すなわち、受けジグを細くすることで溶着線を調整することが可能である。まずフィルム下に固定ジグを設置し、上から 20 kHz の振動でプレスする方法で溶着を試みた。

面 (線) 状に溶着を行うため、ホーンやジグに少しでも凹みや傷があった場合に溶着がうまくいかない。隙間が開いている部分は試料が十分に溶融せず、密着しすぎている部分は焦げ付きや穴あきなどが見られ、結論としてはうまくいかなかった。プレスによって超音波溶着する際にはクリアランスの調整が非常に難しい。特に今回のような極薄試料に対しては、その厚みに伴って極微小なクリアランスの調整を要する。実際にバルーン状に溶着する際には、その微調整をクリアすることが困難であると判断したため、プレス式の超音波溶着法は断念せざるを得なかった。

溶着試験 2(ミシン型)

受けジグを回転するものにし (図 I.4)、ミシンの様に試料を送り出すことで溶着を行った。この方法では溶着部は点となり、また圧力センサーによって上部から一定の圧力をかけることができるため、ホー

図 I.1　20 kHz 超音波溶着機 (BRANSON)。図はプレス溶着用のホーンを装着している。

図 I.2　右図の受けジグを固定するためのジグ

図 I.3　受けジグ。真ん中の細い線に当たる部分が溶着線となる。

ンとジグの間に隙間が開いたり、過度な密着が起きることもない。この方法で溶着は 40 kHz の溶着機で行った (図 I.5)。

溶着されたフィルムは、超音波によって溶融した部分の周囲が盛り上がっていることがわかる (図 I.6)。手で引っ張ったところ十分溶着されていた (引張強度試験については後述する)。ただし送り出し速度が遅すぎた場合、フィルムが過剰に溶融し、穴あきや焦げ付きやの原因となる。また速すぎた場合は、フィルムが破れたり、溶着が不十分に終わったりしてしまうなどの問題がある。

図 I.4　回転ジグとホーン

図 I.5　40 kHz 超音波溶着機 (回転ジグ)

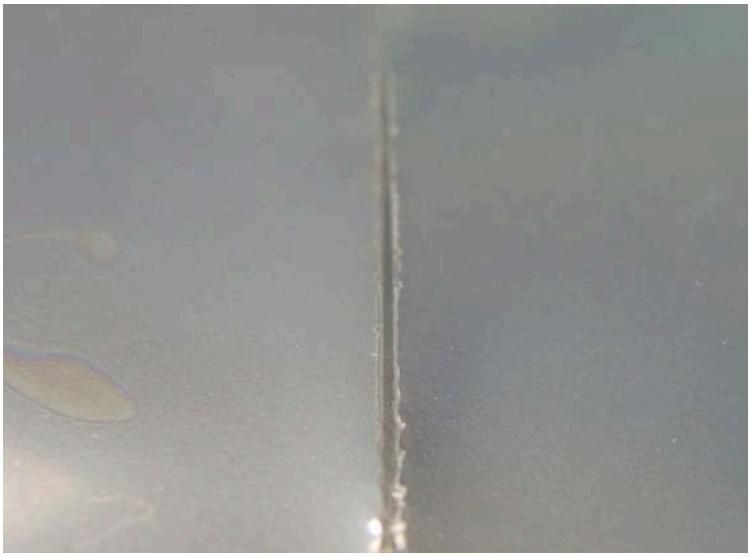

図 I.6　溶着線拡大画像。線幅は 1 mm 以下。

引張破断強度の評価

溶着部が最も強度が低いと考え、前節で扱った超音波溶着によって溶着された PEN サンプル B について引張強度測定を行った。

実験方法

溶着したフィルムを幅 1 cm× 長さ 3 cm の長方形に切り取り、引っ張りながらその時に試験片にかかる応力をフォースゲージ「ZTA-500」(イマダ) にて測定した (本文中測定方法と同様である)。

実験結果

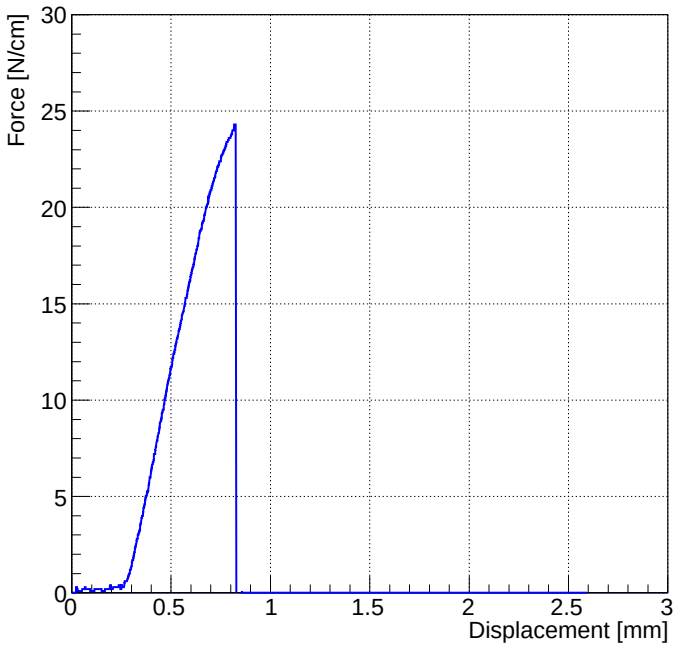

図 I.7　超音波溶着した PEN サンプル B の引張破断強度試験結果

図 I.7 に超音波溶着法によって溶着した PEN サンプル B の試験片に対する引張破断強度試験結果を示した。降伏点到達前にフィルムの溶着線で破断してしまったが、その強度は要求値を満たしている。

考察とまとめ

溶着部における強度が要求値を満たしたため、PEN フィルム製ミニバルーンを原理的には作成できる見通しが立った。しかし超音波溶着機が非常に高価であることや、ホーン部と受けジグの微調整がバルーン作成時にあたって現実的ではない、などの理由から超音波溶着を実際に用いるのは困難を極めると考えられる。

付録 J

その他の発光性バルーンフィルム素材候補

PPO ナイロンおよび PET サンプル A に関して、その発光性能が要求値に満たなかったため本文中からは割愛したが、透過率および含有放射性不純物量についても測定を行ったのでここでまとめておく。

含有放射性不純物の測定

ナイロンフィルムに関しては含有放射性不純物の測定は過去の研究で明らかとなっているため (付録 C)、PET のペレットに関しての測定を行った。本測定は本文中と同様に外部機関に委託したものである。測定結果は表 J.1 の通りとなり、要求値は満たす。

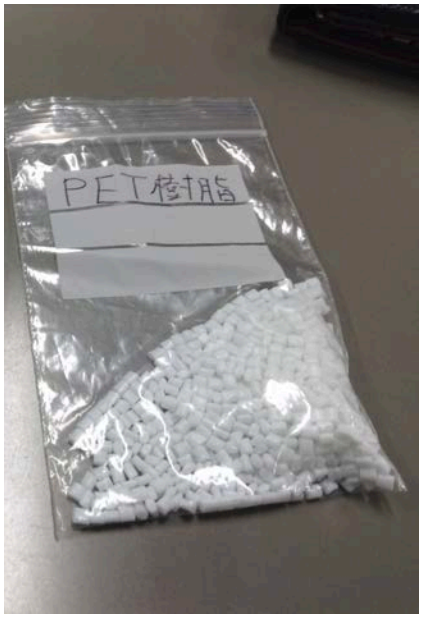

図 J.1　PET ペレット

表 J.1　含有放射性不純物量分析結果。^{40}K については測定結果とその天然存在比 0.0117% から計算によって求めた。

	^{238}U $[10^{-12}$g/g$]$	^{232}Th $[10^{-12}$g/g$]$	K(^{40}K) $[10^{-12}$g/g$]$
要求値	< 3.0	< 3.0	$< 205.1 \times 10^3$ (< 24)
PET ペレット	< 5	< 5	0.2×10^3 (0.0234)

空気中での透過率測定

Xe ランプを光源とし、フィルムサンプルを通した場合と通していない場合の光強度の比で透過率を測定した (図 J.2) ところ、図 J.3 および図 J.4 のような結果が得られた。

$$\text{透過率 [\%]} \equiv \frac{\text{フィルムを挟んだ時の光強度}}{\text{フィルム無しでの光強度}} \tag{J.1}$$

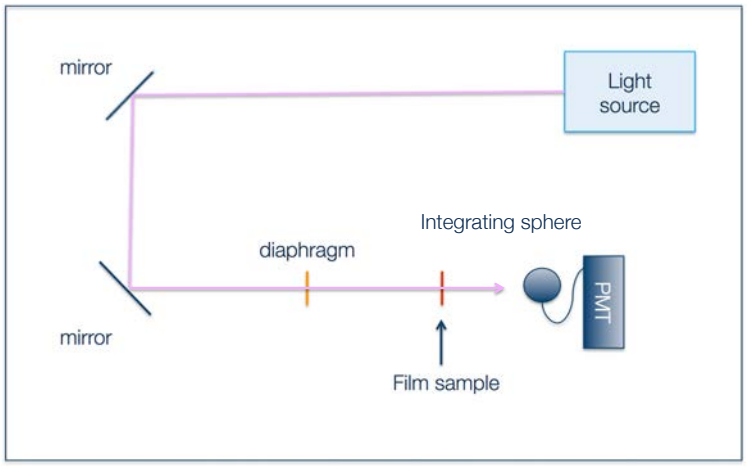

図 J.2　フィルムの透過率測定装置概念図。暗室内に設置。

透過光は積分球で集めた後、PMT で検出する。波長を 1 nm 刻みで変化させ、PMT 側の検出波長もその発光波長に連動して測定することによって暗室の漏れ光などによる影響を少なくしている。光源の安定のためランプ点灯後 30 分放置してから測定をはじめ、また空調によって熱雑音の影響を極力おさえている。光強度の測定はフィルム有り無しで 3 回ずつ行い、その平均値を用いて透過率を算出している。測定誤差は ±3% に抑えられた。

PPO ナイロンは透過率が低くバルーンフィルムの素材としては使用に耐えないことが明らかである。PET サンプル A は測定範囲に KamLAND-LS および Xe-LS の発光波長付近に吸収ピークもなく、全波長で透過率が安定していた。より薄いサンプルではより高い透過率が期待される。

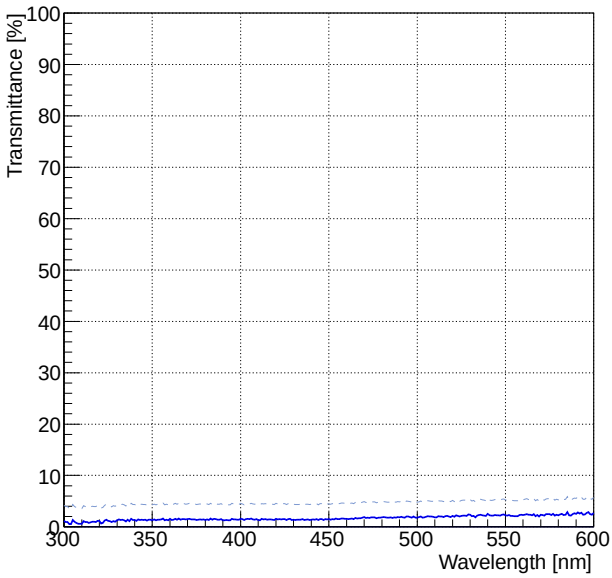

図 J.3　PPO ナイロン (1 mm 厚) の透過率測定結果。破線はエラーバー。

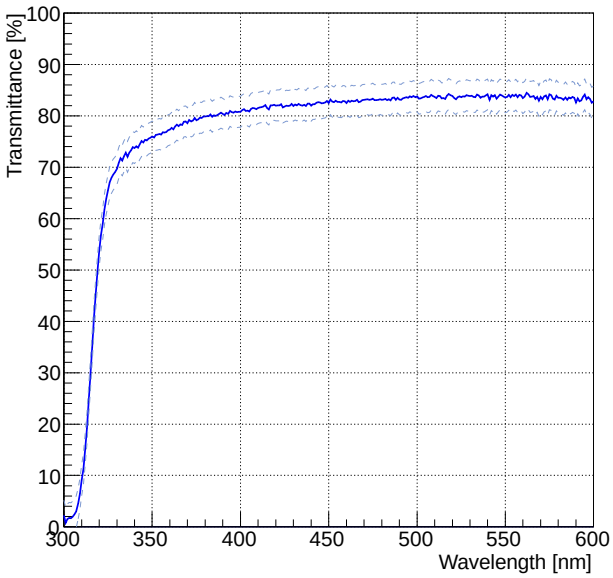

図 J.4　PET サンプル A(50 μm 厚) の透過率測定結果。破線はエラーバー。

参考文献

[1] H. Murayama, Neutrino Physics, http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino/.

[2] T.Yanagida, in Proceedings of the workshop on Unified Theory and Baryon Number of the Uninverse, eds. O.Sawada and A.Sugamoto (KEK, 1979) p.95; M.Gell-Mann, P.ramond and R.Slansky, in Supergravity, eds. P.van Niewwen-huizen and D.Freedman (North holland, Amsterdam, 1979).

[3] M.Fukugita and T.Yanagida (1986) 「Baryogenesis Without Grand Unification」 Phys. Rev. Lett. **174** 45.

[4] W.Pauli (1930) Letter to L. Meitner and her colleagues (letter open the participants of the conference in Tübingen).

[5] T2K http://t2k-experiment.org/ja/neutrinos/a-brief-history/.

[6] E.Fermi (1933) 「An Attempt at a Theory of Beta Rays」 Ricercha Scient. **2**, 2.

[7] E.Fermi (1934) 「Towards the Theory of β-Rays」 Z. Phys. **88**, 161.

[8] F. Reines and C. L. Cowan, Jr. (1956)「The Neutrino」 Nature **178**, 446.

[9] C. L. Cowan et al. (1956) 「Detection of the Free Neutrino : a Confirmation」 Science **124**, 103.

[10] K.Kodama, et al. (2001) 「Observation of tau neutrino interactions」 Phys. Lett. B **504**, 218.

[11] The LEP Collaborations (2002) 「 A Combination of Preliminary Electroweak Measurements and Constraints on the Standard Model」 arXiv: [hep-ex/0212036].

[12] J. N. Bahcall and R. Davis (1976) 「Solar Neutrinos : A Scientific Puzzle」 SCIENCE **191**, 264.

[13] Y. Fukuda, et al. (1998) 「Evidence for Oscillation of Atmospheric Neutrinos」 Phys. Rev. Lett. **81**, 1562.

[14] S.Abe, et al. (2008) 「Precision Measurement of Neutrino Oscillation Parameters with KamLAND」 Phys. Rev. Lett. **100**, 221803.

[15] A.Gando, et al. (2011) 「Constrains on θ_{13} from a three-flavor oscillation analysis of reactor antineutrinos at kamland」 Phys. Rev. D. **83**, 052002.

[16] E.W.Otten and C.Weinheimer (2008) 「Neutrino mass limit from tritium β decay」 Rep. Prog. Phys. **71**, 8.

[17] J.J. Gómez-Cadenas, et al. (2012) 「The Seach for neutrinoless double beta decay」 Riv. Nuovo Cim. **35**, 29.

[18] Kai Zuber (2011) 『Neutrino Physics Second Edition』 CRC Press.

[19] F.T. Avignone III, S.R. Elliott, J.Engel (2007) 「Double beta decay, Majorana neutrinos, and neutrino mass」 Rev. Mod. Phys. **80**, 481.

[20] Particle Data Group 2013.

[21] H.V. Klapdor-Kleingrothaus, et al. (2001) 「Latest results from the HIDELBERG-MOSCOW double beta decay experiment」 Eur. Phys. J.A, **12**, 147-154.

[22] H.V. Klapdor-Kleingrothaus, et al. (2006) 「The evidence for the observation of 0nu beta beta decay: The identification of 0nu beta beta events from the full spectra」 Mod. Phys. Lett. A **21**, 1547.

[23] M.Agostini, et al. (2013) 「Results on Neutrinoless Double-β Decay of ^{76}Ge from phase I of the GERDA Experiment」 Phys. Rev. Lett. **111**, 122503.

[24] M.Auger, et al. (2012) 「Search for Neutrinoless Double-Beta Decay in ^{136}Xe with EXO-200」 Phys. Rev. Lett. **109**, 032505.

[25] J.B.Albert, et al. (2014) 「Search for Majoron-emitting modes of double-beta decay of ^{136}Xe with EXO-200」 Phys. Rev. Lett. **90**, 092004.

[26] Steven Biller, et al. (2014) 「SNO+ with Tellurium」 arXiv:1405.3401v1 [physics.ins-det].

[27] H.M. O'Keeffe, et al. (2001) 「Scintillation decay time and pulse shape discrimination in oxygenated and deoxygenated solutions of linear alkyl benzene for the SNO+ experiment」 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, **640**, 119.

[28] 小畑 旭 (2013) 「Xe を用いた二重ベータ崩壊実験のための集光ミラーと大光量液体シンチレータの開発」 修士論文, 東北大学.

[29] http://cuore.lbl.gov/index.html.

[30] K.Asakura, et al. (2014) 「Results from KamLAND-Zen」 arXiv:1409.0077v1[physics.ins-det].

[31] A.Gando, et al. (2013) 「Limit on Neutrinoless $\beta\beta$ Decay of ^{136}Xe from the First Phase of KamLAND-Zen and Comparison with the Positive Claim in ^{76}Ge」 Phys. Rev. Lett. **110**, 062502.

[32] Azusa Gando (2012)「First Results of Neutrinoless Double Beta Decay Search with KamLAND-Zen」 博士論文, 東北大学.

[33] 中田 貴広 (2012) 「カムランド禅用ミニバルーンの開発研究」 修士論文, 東北大学.

[34] 松田 さゆり (2013) 「第一期 KamLAND-Zen 実験における ^{136}Xe のニュートリノを伴わない二重 β 崩壊に対する制限」 修士論文, 東北大学.

[35] 吉田 学立 (2014) 「Limit on Majorana Neutrino Mass with Neutrinoless Double Beta Decay from KamLAND-Zen」 博士論文, 東北大学.

[36] 大木 歩 (2013) 「新トリガーによる KamLAND-Zen 実験での ^{10}C バックグラウンド除去」 修士論文, 東北大学.

[37] 花篭 紘 (2013) 「KamLAND 用高位置分解能イメージング検出器の開発」 修士論文, 東北大学.

[38] 松田 涼太 (2014) 「加圧環境下におけるニュートリノレス二重ベータ崩壊探索の高感度化に向けた開発研究」 修士論文, 東北大学.

[39] 吉田 学立 (2010) 「液体シンチレータでの粒子識別による α 線バックグラウンド除去の研究」 修士論文, 東北大学.

[40] 成田 和弥 (2011) 「KamLAND-Zen のためのバルーンの開発研究」 修士論文, 東北大学.

[41] H.Nakamura, T.Yamada, Y.Shirakawa, et al. (2013) 「Optimized mounting of a polyethylene napthalate scintillation material in a radiation detector」 Applied Radiation and Isotopes, **80**, 84.

[42] H.Nakamura, T.Yamada, Y.Shirakawa, et al. (2011) 「Evidence of deep-blue photon emission

at high efficiency by common plastic」 EPL, **95**, 22001.

[43] W.R.Leo (1987) 『Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments』 Springer-Verlag.

[44] Itaru Shimizu (2005) 「An Evidence for Spectral Distortion of Reactor Anti-Neutrinos and A Study of Three Flavor Neutrino Oscillation」 博士論文, 東北大学.

[45] 安田 武夫 『プラスチック材料の各動特性の試験法と評価結果 <5>』**51**, 6.

[46] M.Wurm, et al. (2012) 「The next-generation liquid-scintillator neutrino observatory LENA」 arXiv:1104.5620.

[47] 加藤 領 (2012) 「ニュートリノレス 2 重ベータ崩壊観測のための液体シンチレータ開発」 修士論文, 東北大学.

[48] V.A.Rodin, et al. (2007) 「Assessment of uncertains in QRPA $0\nu\beta\beta$-decay nuclear matrix elements」 Nucl. Phys. A. **793**, 213.

[49] 石河 寛昭 (1981) 『液体シンチレーション測定法』 南山堂.

[50] 大和田 憲太郎 (2003) 「水を主成分とする液体シンチレータの開発」 修士論文, 東北大学.

[51] 野口 勉 (1973) 「有機液体シンチレータの発光機構」 『応用物理』 Vol.42, No6, 635.

[52] 丸藤祐仁, 井上邦雄 (2011) 「KamLAND-Zen 実験」『高エネルギーニュース』第 30 巻 3 号.

[53] R.B.Firestone (1999), Table of Isotopes (Eighth Edition, 1999 Update).

[54] 中島 恭平 (2006) 「濃縮法によるカムランド液体シンチレータ用高感度ラドン検出器の開発」 修士論文, 東北大学.

[55] Francis Halzen, Alan D. Martin (1984) 『QUARKS AND LEPTONS : An Introductory Cource in Modern Particle Physics』 Wiley.

謝辞

本論文の執筆、本研究では多くの方々にたくさんのご指導、ご協力をいただきました。この場を借りて御礼申し上げます。

協力企業の皆様

帝人株式会社様からは多くの試験サンプルを提供していただきました。また本社へお伺いさせていただき建設的な議論を交わすことも多く、本研究へのインスピレーションをいただきました。

教員・研究員の皆様

ニュートリノ科学研究センター長である井上先生からは、ニュートリノセンターという恵まれた環境で学ぶ機会を与えていただきました。研究設備・人材・資金それぞれが非常に充実しており、有意義な研究生活を与えていただきました。

白井先生には修士論文主査としてご指導をいただきました。また過去のバルーンに関する研究についての情報を提供してくださり、本研究に関する多くの助言を与えていただきました。

三井先生といえば 4 年生のセミナー時に最も質問をしてくださったのをよく覚えています。勉強不足な点や曖昧に理解をしている点があるとすぐさまそれを見抜いてくるので、非常に勉強になりました。マヨナラを見つけて頂いてありがとうございます。

古賀さん、シフトトレーニング前の安全講習の際には同期一同大変失礼いたしました。古賀さんとは仙台で会う機会が少なくこわい方かと思っていましたが、何回かの神岡出張で優し (くも厳し) い方なのだと思いました。またワイン開けてください。

健悟さんには神岡シフトでお世話になりました。丁寧に説明してくださるのが印象的で、今後シフトに入る際にもご指導よろしくお願いいたします。

丸藤さんには 4 年生の時から研究のすべてにおいて直接ご指導いただきました。当初は実験結果を報告したあとにバッサリ切られることもあり、研究の厳しさを思い知らされました。実験計画・結果に関する議論からはじまり、発表や書類の添削などもしていただき、多忙な中でも時間を割いてくださいました。また (ワインの) 勉強面でもお世話になりました。またよろしくお願いします。

石徹白さんにも 4 年次からお世話になりました。後半になるにつれ石徹白さんの抱える仕事量が目に見えて増えていき、修士 2 年次にはあまり研究に関して進捗報告を聞きに来ることがなくなってしまったのが寂しかったです。

渡辺さんには、特に最後の感度導出シュミレーションにおいてお世話になりました。年末年始の忙しい時期にもかかわらず丁寧にお教えいただき、ありがとうございました。

池田さんとは 4 年生のセミナー時から始まり、また神岡出張時には 1 ヶ月程同じシフトを組まさせていただきました。PPO 溶かすのに苦労したのはいい思い出です。もうヒー

トガンとポンプ回しは嫌です。

清水さんはいつまで働いているのかと驚くほど深夜までお仕事をされていて、いつ寝ているのか疑問でした。KamLAND 内でも仕事の早さは有名で、自分も清水さんを目標にこれから頑張って行きたいと思っています。

上島さんとは初めての Xe シフト、初めての 3rd シフトの時に組ませていただきました。昼夜逆転生活に馴染めず、シフト時間中にまったく使い物にならない状態で申し訳ありませんでした。もし今後 3rd シフトになる際には大量にレッドブルを買っていこうと思います。

玉江さんからはプログラミングの基礎を教えていただきました。毎週毎週の課題で、習うより慣れろを実践できたと思います。

本木さんは最近まったく一緒に学食に行ってくださらないので非常に寂しいです。大学への行き帰り道で会うことが多く、ぼくと本木さんの cross section は相当高いと思っています。

寺島さんからシフトトレーニングをしていただきました。丁寧なご指導ありがとうございました。土日を挟んだために丸藤さんと 3 人で過ごしたあのシフトトレーニング期間は不思議な気分でした。

大谷さんとは研究を始めた際にはよく教育的質問をしてくださり、勉強不足な点を指摘していただきました。KamLAND から異動されることが決まってから、仙台を離れるまでの期間が短く、非常に驚きました。また筑波にお伺いする際にはお世話になります。

技術職員・事務職員の皆様

高山さん、大根と玉ねぎありがとうございます。よく昔の RCNS のお話をしていただいて楽しかったです。

中嶋さんには引張試験機の修理等についてお世話になりました。故障の旨を伝えたあと、気づいた時には修理されたものが返ってきていて驚きました。

根本さんは超音波溶着の試験に一緒に来ていただいたり、よく実験装置の相談にのっていただきました。

鈴木さんとは学生実験の実験装置作成や、Rn バブリング用のグローブボックス発注・設置等をお手伝いいただきました。

澤田さんにはよく坑内で重い物を持っていただきました。ほんと、力のない自分と違ってドラム缶を手で持って歩く澤田さんは僕が女の子だったら惚れてました。

遊佐さんには物品購入でお世話になりました。記憶にあるだけでも 2 年半でかなりのものを購入したと思います。来年度からもよろしくお願いします。

遠藤さん、ちょくちょく放射線計測バッジを返し忘れそうになり申し訳ありません。リマインダーメール助かっています。

大塚さん、ぼく飛行機苦手なのでできるだけ移動は新幹線です。ご迷惑おかけして申し訳ありません。

白鳥さんは朝早くから RCNS 内を清掃されていて、いつもきれいな研究生活環境を整

えていただきました。

松村さんは CAD が使えるとのことで、ぜひ今度教えていただきたいと思っています。

後藤さん、バドミントンと飲み会が楽しかったです。(お仕事されてる印象まったくありませんでしたが、) また遊ぶ機会ありましたらぜひ呼んでください。

先輩方

さゆりさんには主に VectorFileUpdate で面倒を見ていただきました (これからもよろしくお願いします)。ドクターでの解析作業のブラック臭をひしひしと感じており、解析にほぼ触れてない僕なんかがあの膨大な仕事を引き継げるのだろうかと日々震えております。優しく手取り足取り教えてくれると信じていますので、先にお礼を言っておきます。ありがとうございます。

ベンダは日本語がとてもうまく、英語が苦手な自分はいつも日本語で話しかけていました。苦手ならばなおさら英語で会話をする練習をすべきだとはいつも思ってはいるのですが、思っているだけで結局ベンダの日本語力に頼ったままでした。これからは英語で話すことを心がけます (　)。

竹本さん、これまでも大変お世話になりましたが、おそらくこれからの AutoAlarm 引き継ぎの方がご迷惑おかけするかと思います。困ったら神岡に電話すれば竹本さんがいるという安定感は素晴らしいので、これからも KamLAND のスーパーバイザーとしてよろしくお願いします。

吉田さん、センターで飲める人が少なくなって寂しいです。学振申請時にはたくさんアドバイスしていただき、非常に助かりました。これから同じ研究者としての一歩を踏み出せることに喜びを感じています。ドクター進学を決めた最後のきっかけは吉田さんと朝まで飲んだ時に言われたことだったのですが、覚えていらっしゃらないようなのが残念です笑。

大木さんはお酒が入ると素面の雰囲気を出しながら訳分かんないことをしゃべるので非常に面白かったです。よく飲みに付き合っていただき、楽しい学生生活を過ごせました。

松田さんとは発表スライドや、実験の図について美しくなければいけないということでよくお話をしていました。先輩方が修論書き始めの際に一緒に着手したら、「お前はまだ書くんじゃない」と怒られたのを覚えています。無事、修論完成出来ました。

山内さん、うん、もっと仙台にいて欲しかったです。また仙台に来てください。そして来るときはちゃんと連絡してくださいね。

石川さん、無事に卒業できて嬉しいです。「石川くんは任せた」と先輩方から仰せつかったものの、特に何もしていませんが、約束を果たせました。もう石川さんのいただきます&ごちそうさまでしたを聞けないのかと思うと寂しいのでいつでも学食に来てください。

江澤さん、帰ってきて嬉しいです。嬉しすぎて先輩方に速報出してしまいました。鎌田さんも引っ張ってきてください。

同期たち

朝倉くんは飛び級して山大から来るという噂を聞いた時は戦々恐々としていました。実際は、掘れば掘るほどにネタが豊富で、掘ってもいないところに新たなネタを投下するというガバガバぶりにはいつも楽しませてもらいました。修論提出間際には、いつになく頑張っている姿を見かけ、やればできるんじゃんすごいなぁと見ていましたが、なんだかんだ間に合っていないのが朝倉くんらしいです。地味に交友関係が謎でした。

石尾くんは毎日毎日地下にこもり、研究室に来ているのか確認できない日々もおおく、シュレディンガーの猫でした。初めは研究テーマが近かったのに、途中から変更してしまってすいません。カメラは非常に面白い研究だと思います。

榎本くんは bis-MSB 添加 LS の開発でお世話になりました。ちょうどいい波長変換剤があって助かりました。

坂井くんは就職活動時期にも関わらず、学会発表でトリをつとめそのまま J-PARK へ出張するなど、博士課程進学する僕よりも研究に勤しんでいて驚きました。何より、はじめはハードウェアの開発をしていたかと思えば、気付くと解析をしていたりと、研究者として坂井くんの方がいろいろとスペック高いんじゃないかと思って震えております。

立花くんは毎日毎日決まった時間に来て、コツコツ研究し定時に帰るという僕とは正反対のスタイルで、いつも凄いなと思っていました。あとよく飲みに付き合ってもらって嬉しかったです。みなさんもこれくらいフットワークは軽くいきましょう。

林田くんの生活リズムはニュートリノセンター 3 大謎の 1 つで、というかその風貌から想像だにしない性格が 2 つ目の謎で、3 つ目は過去の恋愛話でしょうか。あと 3 年間はともに過ごす仲としてこれから謎を解くのを非常に楽しみにしています。これからもよろしくです。あと学振頑張ってください。

板垣くんとは 4 年生のセミナーでも院試ゼミでも大変お世話になりました。いやほんと、先生でした。人一倍勉強していて、板垣くんのセミナー資料は途中式計算もしっかり書いてあるので大変助かったのを覚えています。

寺尾氏。なんで就職するのさ。とりあえず FX で大赤字出さないよう頑張って下さい。

物理学科のみなさん、もうちょっと飲み会とか行事参加してくれてもいいと思うんですがダメですかね。これから就職するみなさんも、もう就職してる方も、仙台に来たら是非社会人パワーでおごってください。ともに博士課程進学するみなさん、これからも飲み会するんでまだまだお付き合いよろしくお願いします。

後輩諸君

大浦くん、液シン飲みに僕も参加したいので小畑さんを呼ぶときは僕にも声かけて下さい。就職活動も、いろいろと次期がずれたことによって昨今は事情が変わってきてると思いますが頑張ってください。就職活動は楽しいです。

白旗くんはお酒が入ると毒舌になるのが非常に面白いと思います。意外と遊べる人なのかなと 12 月の合コ... 飲み会あたりで思いました。期待してます。学振は白旗くんくらい

の業績あれば通らないはずはないと思うので心配してないです。

蜂谷くんとは BiPo での発光量測定や発光波形測定など同様の実験をすることもあり、議論を交わす機会がよくありました。なかなかつっこんでくるので自分の不勉強を実感することもありましたが、これからもよろしくお願いします。あと学振頑張って。

楢崎くん、そろそろオーバーに行きたいなと思っている今日このごろです。連れてってください。

尾崎くんは引き継ぎ苦労したと思いますが、頑張って研究すすめてください。

狩野くんは出身が秋田で同じということで話が盛り上がることもありますが (ないか)、僕と違っていつも姿勢よく真面目に仕事してるので見習いたいです。

高井くんは石尾くんみたいにカメラ部屋に引きこもらないで院生室にも顔を出しましょう。

寺岡さんの英語がすごくて見習いたいと思います (といって特別何をするでもない)。

林さんが毎日ちゃんとお弁当つくってくるので、さぼりがちな自分も見習いたいと思います。

誰かに

秋田県人会のみんなとはよく飲みに行ったり、飲み会したり、セメ乙飲みしたりしました。おかげさまで最低月 1 で息抜きができて非常に楽しかったです。院試の 1 週間前に院試おつかれ飲みをしたのは謎でしたが。

卓球部には引退してからも部活に参加させて頂いていたり、そして修士論文を書いている今もオープン大会に一緒に出たり、楽しい学生生活を過ごせました。これからも行くのでよろしくお願いします。

ここ数年間でたくさんの人達と出会い、また別れ、たくさんのことを学ばせていただきました。また多くを与えていただきました。でもたぶん思っている以上に僕は感謝しています。これからは安定した生活を続けていきたいです。

最後に

常に支援してくれた家族、友人たちに感謝します。他にも感謝の気持ちを伝えたい人たちは多くいますが、それを書くには余白が狭すぎるようです。

来年度からは博士課程進学し、また 3 年間、研究室でお世話になります。どうか皆様お手柔らかにご指導ご鞭撻の程、よろしくお願いいたします。